

Entwicklung einer Apparatur zur zeitlichen Vermessung von intensiven Attosekundenpulsen

—DIPLOMARBEIT—

zur Erlangung des akademischen Grades

Diplom-Physiker



seit 1558

FRIEDRICH-SCHILLER-UNIVERSITÄT JENA

PHYSIKALISCH-ASTRONOMISCHE FAKULTÄT

INSTITUT FÜR OPTIK UND QUANTENELEKTRONIK

eingereicht von Martin Wünsche,

geboren am 16.08.1986 in Jena

Tag der Disputation : 28.03.2013

1. Gutachter
Prof. Dr. rer. nat. habil. Gerhard G. Paulus
Institut für Optik und Quantenelektronik Jena
Friedrich-Schiller-Universität Jena
2. Gutachter
Prof. Dr. rer. nat. habil. Eckhart Förster
Institut für Optik und Quantenelektronik Jena
Friedrich-Schiller-Universität Jena

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass die vorliegende Arbeit von mir selbständig verfasst und ich keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe. Diese Arbeit wurde bisher keiner anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Jena, den 26. März 2013

Seitens des Verfassers bestehen keine Einwände diese Arbeit für öffentliche Nutzung in der Thüringer Universitäts- und Landesbibliothek zur Verfügung zu stellen.

Jena, den 26. März 2013

Inhaltsverzeichnis

1. Motivation	1
2. Physikalische Grundlagen	4
2.1. Ausgewählte Eigenschaften von Laserpulsen	4
2.2. Ionisationsprozesse	8
2.3. Erzeugung von XUV-Attosekundenpulsen an dichten Oberflächenplasmen	13
2.3.1. Lasererzeugte Plasmen	13
2.3.2. Relativistische Lasererzeugte Plasmen	15
2.3.3. Erzeugung von Oberflächenharmonischen	16
3. Messmethodik: Autokorrelation	20
3.1. Gängige Verfahren	20
3.2. Lineare Autokorrelation & Kohärenz	21
3.3. Nichtlineare Autokorrelation von optischen Laserfeldern	26
3.4. Nichtlineare Autokorrelation von Attosekundenpulszügen	27
3.5. Prozess der nichtlinearen Ionisation mit XUV-Pulsen	31
4. Konstruktionskriterien	34
4.1. Fokussierung der XUV-Pulse auf hohe Intensitäten	34
4.2. Zeitlicher Versatz der Pulsreplika zur Realisierung einer Autokorrelation .	39
4.3. Selektion der Harmonischen durch spektrale Filterung	40
4.4. XUV-Spektrometer zur Diagnostik der ROM-Harmonischen	43
4.5. Apparatur zur nichtlinearen Autokorrelation	46
5. Experiment	47
5.1. Teil-Experiment 1: Stabile Erzeugung der ROM-Harmonischen	47
5.2. Teil-Experiment 2: Fokussierung & Ionisation mit Harmonischenstrahlung	52
5.2.1. Test der XUV-Optiken	53
5.2.2. Erste Ionisationsexperimente mit Harmonischenstrahlung	55
5.3. Teil-Experiment 3: Nichtlineare Autokorrelation der ROM-Harmonischen	64
5.3.1. Zeitliche spektrale Abhängigkeit der nichtlinearen Ionisation . . .	64
5.3.2. Zeitliche spektrale Abhängigkeit der linearen Ionisation	67

6. Zusammenfassung & Ausblick	69
7. Danksagung	72
Anhang	73
A. Formeln	74
B. Berechnungen	75

1. Motivation

Die Wechselwirkung von elektromagnetischer Strahlung mit Materie ist von großer Bedeutung für die Physik mit weitreichenden Konsequenzen in Wissenschaft und Technik. Seit den ersten Pionierexperimenten von Lenard und Hallwachs mit Kathodenstrahlen ist bekannt, dass man zum Herauslösen von Elektronen aus Atomen Photonen gewisser Energie benötigt [17]. Die Ionisation von Atomen und Molekülen mit dieser hochfrequenten Strahlung besitzt eine lineare Abhängigkeit von der Intensität. Durch die Entwicklung des Lasers [46] war allerdings die Möglichkeit gegeben, sehr hohe Intensitäten zu erzeugen. Die stete Weiterentwicklung der Lasersysteme zu höheren Leistungen im TW- [68] bzw. PW-Bereich [53], kürzeren Pulsen [32] und kürzeren Wellenlängen [1, 18] ermöglicht mittlerweile die nichtlineare Ionisation durch die Absorption mehrerer Photonen [2] - selbst für gebundene Elektronen in den inneren Schalen [59]. Mit extrem kurzen und intensiven Lichtpulsen kann zudem die Ionisation zeitaufgelöst untersucht werden [12]. Zum Beispiel beträgt die Rotationsperiode der Elektronenbewegung im $1s$ -Zustand nach dem Bohrschen Atommodell ca. 150 as. Seit den letzten 10 Jahren ist die Laserentwicklung soweit vorangeschritten, dass die Dynamik gebundener Elektronen mit Attosekunden-Auflösung (10^{-18} as) untersucht werden kann [40, 11]. Für die Vermessung solcher kurzen Dynamiken ist sowohl die Erzeugung von Attosekundenpulsen als auch deren zeitlichen Charakterisierung notwendig.

Herstellen lassen sich solche Pulse über die Erzeugung von hohen Harmonischen der Laserfrequenz (engl. 'High Harmonic Generation' HHG) durch die nichtlineare Wechselwirkung des Laserpulses in Gasen [42] oder an Plasmen mit Festkörperdichte [71]. Bei der Erzeugung an Plasmaoberflächen unterscheidet man dabei zwischen dem nichtrelativistischen Erzeugungsprozess 'Coherent Wake Emission' (CWE) [55] und dem Prozess des 'relativistisch oszillierenden Spiegels' (engl. 'Relativistic Oscillating Mirror', ROM) [45]. Die Attosekundenpulse, die durch die verschiedenen Prozesse erzeugt werden können, unterscheiden sich dabei wesentlich in Pulsdauer, Pulsenergie und ihrer spektralen Verteilung.

Aktuell stellen die Gasharmonischen mit 80 as [26] die kürzesten Attosekundenpulse dar. Eine Messung der CWE-Harmonischen mit einer nichtlinearen Autokorrelation ergab eine Pulsdauer der Attosekundenpulse von ca. 900 as [51]. Die Pulsdauern der ROM-Harmonischen wurden experimentell noch nicht bestätigt, liegen aber laut Simulationen - für Parameter wie die des *JETI*-Lasers - bei ca. 100 as [6, 74]. Sowohl die Gas- als auch die

ROM-Harmonischen scheinen somit für die Auflösung von sehr schnellen Elektronendynamiken $\propto 100$ as geeignet. Die ROM-Harmonischen könnten außerdem den Vorteil hoher Konversionseffizienz und hoher XUV-Pulsenergie besitzen [4, 61]. Liegen die Pulsenergien für die Gasharmonischen typischerweise bei einigen nJ [69], so beträgt die Pulsenergie für die ROM-Harmonischen ca. $10 \text{ nJ} \dots 1 \mu\text{J}$ pro Harmonische [9]. Die ROM-Harmonischen könnten damit eine deutlich intensivere Quelle von Attosekundenpulsen darstellen als die Gasharmonischen. Ein wesentlicher Vorteil der ROM-Harmonischen gegenüber den CWE-Harmonischen liegt in der Skalierbarkeit der spektralen Bandbreite. Wird die spektrale Reichweite für die CWE-Harmonischen durch das Erzeugermedium limitiert [55], so werden die ROM-Harmonischen lediglich durch die Laserintensität begrenzt [74]. So beträgt die energetische Obergrenze (Cut-Off-Energie) der CWE-Harmonischen für Glastargets ca. 30 eV [71]. Für die ROM-Harmonischen skaliert die Cut-Off-Energie mit dem relativistischen γ -Faktor und somit nahezu ausschließlich mit der Laserintensität. Denkbar ist es daher, mit zukünftigen Hochintensitätslasern Attosekundenpulse durch den ROM-Mechanismus bis in den keV- bzw. Röntgen-Bereich zu erzeugen [16]. Die ROM-Harmonischen stellen folglich eine interessante und intensive XUV-Strahlquelle dar, mit der diverse Ionisationsmechanismen auf sehr kurzen Zeitskalen untersucht werden können. Sie könnten aufgrund ihrer Intensität eine alternative Strahlquelle für Experimente darstellen, die bisher nur an Freie-Elektronen-Lasern (FEL) durchgeführt werden konnten. Die zeitliche Charakterisierung und somit der erstmalige Nachweis der Attosekunden-

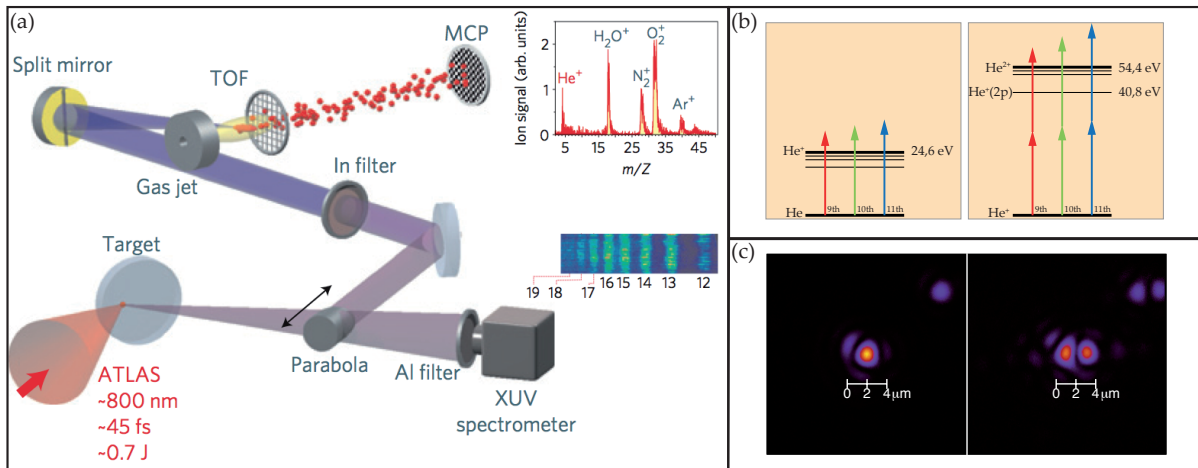


Abb. 1.1.: Schematische Skizze des experimentellen Aufbaus zur zeitlichen Charakterisierung der ROM-Harmonischen mit einer nichtlinearen Autokorrelation:

(a) Als Vorlage für die zeitlichen Charakterisierung der ROM-Harmonischen diente das Experiment der nichtlinearen Autokorrelation der CWE-Harmonischen durch die Zwei-Photonen-Ionisation von Helium [51]. (b) Zur nichtlinearen Autokorrelation der hochenergetischen ROM-Harmonischen, $20 \leq \varepsilon_{\text{ph}} \leq 50 \text{ eV}$, soll der 2-Photonenprozess von He^{1+} nach He^{2+} verwendet werden. (c) Dabei sollen die beiden Pulsreplika der ROM-Harmonischen zueinander versetzt werden, sodass eine Intensitätsabhängigkeit der Ionisation nachgewiesen werden kann.

pulsdauer der ROM-Harmonischen wäre deshalb ein wichtiger experimenteller Schritt. Das Ziel dieser Diplomarbeit ist es, eine Apparatur zur Vermessung der Pulsdauer von intensiven ROM-Harmonischen zu konstruieren und im Experiment zu testen. Dazu soll das Verfahren der nichtlinearen Autokorrelation verwendet werden, das bereits bei der Charakterisierung der CWE-Harmonischen zum Einsatz gekommen ist, siehe dazu Abbildung 1.1.

In der vorliegenden Arbeit wird - ausgehend von der Beschreibung der physikalischen Grundlagen zur Erzeugung von Harmonischenstrahlung (Kapitel 2) - die Methode der Autokorrelation und insbesondere die der nichtlinearen Autokorrelation beschrieben (Kapitel 3). Im Anschluss dessen werden die Konstruktionskriterien zur technischen Umsetzung der Apparatur diskutiert und der Aufbau präsentiert (Kapitel 4). In Kapitel 5 wird der Test des Apparates beschrieben und die Ergebnisse der Autokorrelation vorgestellt. Abschließend werden die Ergebnisse diskutiert und die gesamte Arbeit zusammengefasst (Kapitel 6).

2. Physikalische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die notwendigen Mechanismen vorgestellt, die für ein Verständnis der Erzeugung von Hoher Harmonischenstrahlung an dichten Plasmen notwendig sind. Dazu wird insbesondere auch auf die Eigenschaften von gepulsten Lichtfeldern eingegangen.

2.1. Ausgewählte Eigenschaften von Laserpulsen

Ein Laserpuls wird durch die Feldverteilung $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ charakterisiert:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t) \exp(i\varphi(\mathbf{r}) - i\omega t) \quad (2.1)$$

Dabei entspricht $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t)$ der zeitabhängigen Einhüllenden mit dem Betrag $|\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t)|$. Der Phasenterm $\exp(i\varphi(\mathbf{r}) - i\omega t)$ beschreibt mit der Kreisfrequenz ω die Oszillation der Trägerwelle unter der Einhüllenden und besitzt die Phase $\varphi(\mathbf{r}) = \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \varphi_0$, die durch den Wellenvektor \mathbf{k} beschrieben wird. Häufig wird die Einhüllende durch ein gaußförmiges Pulsprofil beschrieben:

$$E_0(t) \propto \exp(-4 \ln(2) t^2 / \tau_P^2) \quad (2.2)$$

Die Halbwertsbreite τ_P (engl. full-width at half-maximum) der Gaußverteilung wird im Folgenden als Pulsdauer bezeichnet.

Chirp & spektrale Phase

Ist die Oszillationsfrequenz des Pulses ω eine zeitabhängige Größe $\omega(t)$, so spricht man von einem 'gechirpten' Puls. Ein linearer Chirp¹ (mit dem Parameter b) kann dadurch ausgedrückt werden, dass die Phase quadratisch von der Zeit $\varphi(t) = bt^2$ abhängt:

$$\omega(t) = \frac{d\varphi}{dt} = \omega_0 + 2bt \quad (2.3)$$

Bei einem Anstieg der Momentanfrequenz $b > 0$ spricht man von einem 'Up-Chirp', im umgekehrten Fall von einem 'Down-Chirp'. Abbildung 2.1 verdeutlicht den Feldverlauf von gechirpten Pulsen.

¹Eine lineare Änderung der Momentanfrequenz

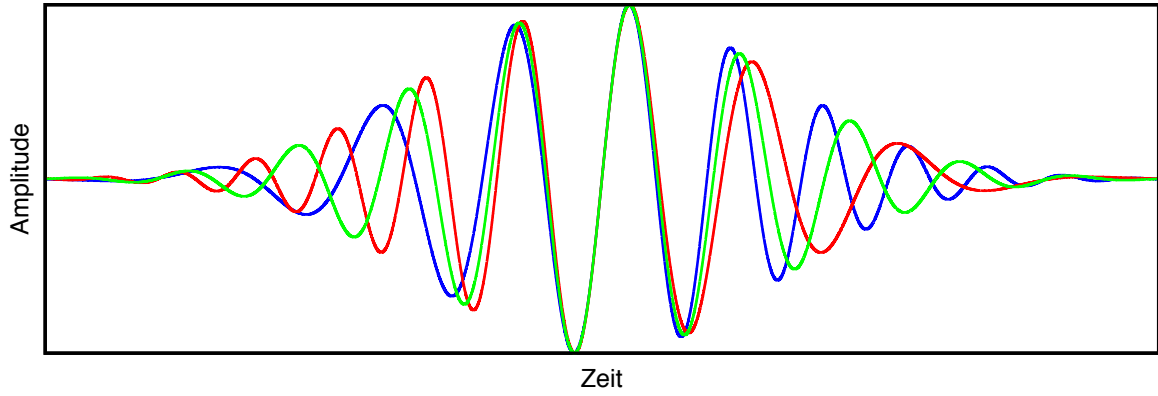


Abb. 2.1.: **Gechirpte Pulse:** Der ursprüngliche chirp-freie Puls (**grün**) ändert seine Frequenz mit der Zeit (von links nach rechts) nicht. Unterliegt der Puls einem Chirp, so erhöht sich die Frequenz im Fall des positiven Chirps (**blau**) und verringert sich für den negativen Chirp (**rot**).

Die zeitabhängige Feldverteilung $E(t)$ wird in die frequenzabhängige Verteilung $\mathcal{E}(\omega)$, (auch Spektrum bzw. Frequenzspektrum) durch eine Fourier-Transformation überführt:

$$\mathcal{E}(\omega) \equiv \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \exp(i\omega t) dt = |\mathcal{E}(\omega)| \exp[i\varphi(\omega)] \quad (2.4)$$

Dabei ist $|\mathcal{E}(\omega)|^2$ der spektralen Intensität I proportional. Die Größe $\varphi(\omega)$ wird auch spektrale Phase genannt. Die Halbwertsbreite im Zeitbereich $\Delta\tau$ bzw. τ_P ist mit der Halbwertsbreite im Frequenzraum $\Delta\omega$ über das Zeit-Bandbreiten-Produkt² ('time bandwidth product' TBP)

$$\Delta\tau\Delta\omega \geq \frac{K}{2\pi} \quad (2.5)$$

verknüpft. Ferner bedeutet es, dass das Frequenzspektrum für kurze Pulse eine gewisse Breite aufweisen muss. Dabei können Pulse die Gleichheit in Gleichung 2.5 erfüllen. Sie weisen dann bei gegebener Pulsdauer ein Spektrum minimaler Breite auf und werden Fourier-limitierte bzw. Bandbreiten-limitierte Pulse genannt. Die spektrale Phase ist in diesem Fall eine konstante bzw. lineare Funktion.

Die spektrale Phase kann beim Durchgang durch ein dispersives Medium mit dem komplexwertigen Brechungsindex $\tilde{n}(\omega)$ und der Länge L manipuliert werden. Der Brechungsindex $\tilde{n}(\omega) = n_R(\omega) + in_I(\omega)$ besteht dabei aus einem phasenverändernden Term $n_R(\omega)$ und einem absorbierenden Term $n_I(\omega)$. Der zusätzliche Phasenterm berechnet sich dann zu

$$\exp(-i\omega \cdot \underbrace{\tilde{n}(\omega)L/c}_{\varphi(\omega)}) \quad (2.6)$$

²Für Gaußpulse gilt $K = 2 \ln 2 = 0,44$.

mit $\varphi(\omega) = \beta(\omega)L$. Die Propagationskonstante $\beta(\omega) = \omega n_R(\omega)/c$ lässt sich als Phasenshift pro Einheitslänge verstehen. Alle weiteren Ableitungen von $\beta(\omega)$ und $\varphi(\omega)$ hängen über

$$\frac{d^n \varphi}{d\omega^n} = \frac{d^n \beta}{d\omega^n} L \quad (2.7)$$

zusammen. Durch eine Taylorreihen-Entwicklung der spektralen Phase lassen sich somit die verschiedenen Einflüsse der Terme analysieren. Die Entwicklung um ω_0 ergibt:

$$\varphi(\omega) = \underbrace{\varphi(\omega_0)}_{\text{CEP}} + \underbrace{\frac{d\varphi}{d\omega}\bigg|_{\omega_0}}_{\text{GD}} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2!} \underbrace{\frac{d^2\varphi}{d\omega^2}\bigg|_{\omega_0}}_{\text{GDD}} (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{3!} \underbrace{\frac{d^3\varphi}{d\omega^3}\bigg|_{\omega_0}}_{\text{TOD}} (\omega - \omega_0)^3 + \mathcal{O}(\omega^4) \quad (2.8)$$

Term 1 $\varphi(\omega_0) = \varphi_0 \equiv \varphi_{\text{CE}}$ beschreibt im Zeitbereich den Phasenhub zwischen der Pulseinhüllenden und der darunter liegenden Trägerfrequenz ω_0 und wird absolute Phase bzw. carrier-envelope Phase (CEP bzw. CE-Phase) genannt und ist in Abbildung 2.2 dargestellt. Sind die Phasengeschwindigkeit $v_P = n_R(\omega)/c$ der Einhüllenden und Grup-

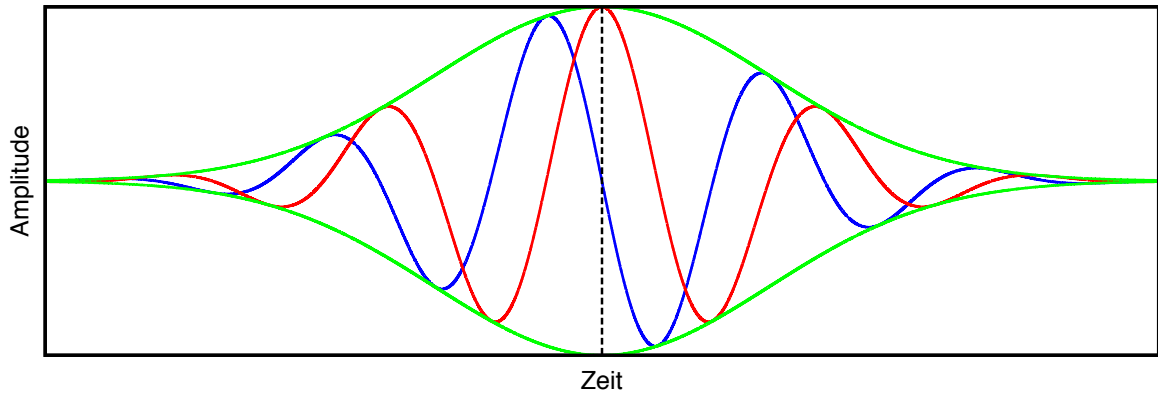


Abb. 2.2.: **CE-Phase:** Der Phasenversatz der Pulseinhüllenden (**grün**) zur Trägerwelle (**rot** bzw. **blau**) wird durch die CE-Phase beschrieben. Sie entspricht der Differenz der Lage vom Einhüllendenmaximum zum nächsten Maximum der Trägerwelle. Ist $\varphi_0 = 0$ so liegen die Maxima der Einhüllenden (**gestrichelt** markiert) und der Trägerwelle übereinander (**rot**). Aufgrund der Symmetrie um das Einhüllendenmaximum wird dieser Puls 'kosinusartig' genannt. Im anderen Extremfall $\varphi = \pi/2$ sind die Maxima um einen Viertelwellenzug zueinander versetzt (**blau**). Dann ist der Puls 'sinusartig'.

pengeschwindigkeit $v_G = 1/\frac{d\beta}{d\omega}$ der Trägerwelle verschieden, so ändert sich im Laufe der Propagation die CE-Phase:

$$\Delta\varphi_{\text{CE}} = \left(\frac{1}{v_P} - \frac{1}{v_G} \right) L \quad (2.9)$$

Term 2 $\left. \frac{d\varphi}{d\omega} \right|_{\omega_0}$ ist das 'group delay' (GD)³:

$$\text{GD} \equiv \left. \frac{d\varphi}{d\omega} \right|_{\omega_0} = \left. \frac{d\beta}{d\omega} \right|_{\omega_0} L = \frac{1}{\nu_G} L \equiv \Delta t \quad (2.10)$$

GD entspricht der zeitlichen Verzögerung Δt der Phase durch den Einfluss von dispersiven Medien. **Term 3** der Taylor-Entwicklung $\left. \frac{d^2\varphi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0}$ ist die 'group delay dispersion' (GDD):

$$\text{GDD} \equiv - \left. \frac{d^2\varphi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} = \frac{1}{\nu_G^2(\omega_0)} \frac{d\nu_G}{d\omega} L \quad (2.11)$$

Ist dieser Term verschieden von Null, so besitzen verschiedene spektrale Bereiche verschiedene Phasengeschwindigkeiten. Dies ist charakteristisch für die bereits erwähnten gechirpten Pulse. Durch die GDD verändert sich die ursprüngliche Bandbreiten-limitierte Pulsdauer der Intensitätsverteilung τ_{P0} in folgender Weise [64] (siehe auch Gleichung B.8):

$$\tau_P = \tau_{P0} \cdot \sqrt{1 + \left(4 \ln 2 \frac{\text{GDD}}{\tau_{P0}^2} \right)^2} \quad (2.12)$$

Ist der Eingangspuls bereits mit GDD_1 gechirpt und besitzt daher eine verbreiterte Pulsdauer, so lässt sich unter Verwendung von Medien mit entgegengesetzter GDD_2 eine Kompensation des Chirps erreichen. Für Attosekundenpulse ist die Verbreiterung der Pulsdauer durch die GDD in Abbildung 2.3 dargestellt.

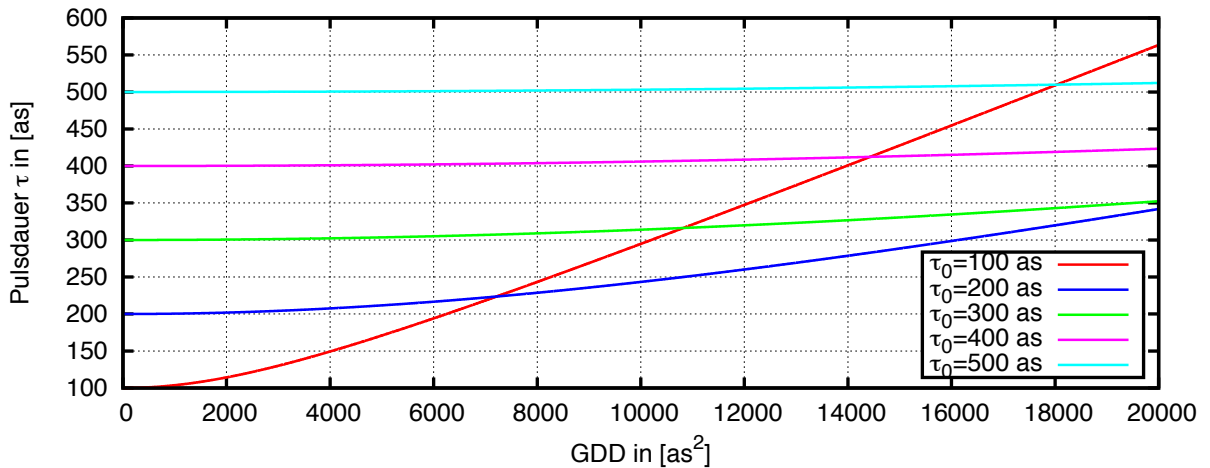


Abb. 2.3.: Einfluss der GDD auf die Attosekunden-Pulsdauer: Für verschiedene Pulsdauern im Bereich von $\tau_{P0} = 100$ as bis $\tau_{P0} = 500$ as ist der Einfluss der GDD auf die Pulsdauer eingezeichnet. Insbesondere für kleine Pulsdauern von wenigen 100 as ist der Einfluss des Chirps auf die Pulsdauer größer als für deutlich längere Pulse.

³Gelegentlich wird auch die erste Ableitung der Propagationskonstante $\beta(\omega)$ als Gruppendelay bezeichnet.

2.2. Ionisationsprozesse

Die Ionisation von Teilchen kann über Stöße, Potentialdeformationen (Feldionisation) oder aber durch Photoabsorption erfolgen:

Stoßionisation: Die kinetische Energie des ersten Stoßpartners wird auf den zweiten (hier das Elektron) übertragen. Überschreitet der gewonnene Energiebetrag des Elektrons das Potential des Atoms so führt das zur Ionisation des Systems. Im anderen Fall zur Anregung des Atoms.

Feldionisation: Hier wird das atomare System durch starke elektrische Felder beeinflusst, die das atomare Potential deformieren bzw. übersteigen. Das Elektron kann dadurch entweder durch eine endliche Potentialbarriere quantenmechanisch tunneln (Tunnelionisation) oder aber direkt ionisieren ('Over-the-Barrier-Ionisation').

Photoionisation: Hier ionisiert ein elektronisches System durch Absorption von Photonen. Entweder werden dabei die Atome bzw. Moleküle direkt ionisiert, sequentiell über angeregte Zustände oder aber durch den Energieübertrag zweier angeregter Elektronen untereinander (Autoionisation).

Seit der Verfügbarkeit intensiver Laserquellen kann das Ionisationsverhalten verschiedener Atome bzw. Moleküle, speziell das der Photoionisation und Feldionisation, experimentell untersucht werden.

Die nichtlineare Ionisation bei intensiven Feldern

Für die Ionisation werden im linearen Fall - bei der Absorption eines Photons - Photonenenergien benötigt, die oberhalb der Bindungsenergie liegen ($\varepsilon_{Ph} \geq \varepsilon_I$). Liegt die Photonenenergie unterhalb der Bindungsenergie, kann das Atom dennoch - wenn auch mit geringerer Wahrscheinlichkeit - ionisieren, indem mehrere Photonen absorbiert werden (Multiphoton-Ionisation). Dazu muss die N -fache Photonenenergie das Ionisationspotential ε_I übersteigen:

$$N\hbar\omega \geq \varepsilon_I \quad (2.13)$$

In Abhängigkeit der Stärke des Feldes, die von der Photonendichte und der Photonenenergie bestimmt wird, lässt sich dessen Einfluss auf das atomare Potential durch den Keldysh-Parameter [39]

$$\gamma = \sqrt{\frac{\varepsilon_I}{(2\pi)^2 2U_P}} \propto \sqrt{\frac{2\varepsilon_I}{I}} \frac{1}{\lambda} \equiv \frac{\omega\sqrt{2\varepsilon_I}}{|\mathbf{E}(t)|} \quad (2.14)$$

beschreiben und zwischen Multiphoton- bzw. Tunnelionisation differenzieren. Dabei liegt für die Grenzfälle ($\gamma \gg 1$) und ($\gamma \ll 1$) eine schwache Störung (Multiphoton-Ionisation)

bzw. eine starke Störung (Tunnelionisation) vor [13]. Hierbei ist U_P die ponderomotive Energie. Sie entspricht der gemittelten kinetischen Energie des Elektrons im Laserfeld.

schwache Störung Liegt eine schwache bzw. keine Störung des atomaren Potentials vor, so kann durch die Störungstheorie [19] die Ionisationsrate mit

$$\Gamma_N = \sigma_N(\omega, \mathbf{p})(I_L/\omega)^N \quad (2.15)$$

beschrieben werden. Hierbei ist $\sigma_N(\omega, \mathbf{p})$ der generalisierte Wirkungsquerschnitt der Multiphotonabsorption als Funktion der Frequenz ω und des Polarisationszustands \mathbf{p} . I_L ist die Intensität mit der Potenz N , die die Ordnung des Multiphotonen-Prozesses angibt. Der Wirkungsquerschnitt ist hier nur abhängig von der atomaren Struktur, sowie der Frequenz und der Polarisation der eingehenden Strahlung, nicht aber von deren Intensität. Die Ionisationsrate hängt in $2N$ -ter Ordnung⁴ von der Feldstärke ab.

Werden mehr Photonen $N + S$ als notwendig⁵ absorbiert, spricht man von der 'Above-Threshold-Ionisation' (ATI). Das Spektrum der Photoelektronen weist dann peak-artige ATI-Strukturen auf, entsprechend der Ordnung S zusätzlich absorbiert Photonen [2].

starke Störung Im Fall einer starken Störung des atomaren Potentials U_A durch das Strahlungsfeld $\mathbf{E}(t)$ kommt es zu deutlichen Potentialdeformationen. Das Potential kann abgesenkt bzw. angehoben werden, woraufhin sich eine endliche Potentialbarriere bilden kann - das quantenmechanische Tunneln wird möglich. In diesem Bereich wird deshalb von Tunnelionisation gesprochen. Die Überlagerung des atomaren (ungestörten) Potentials mit dem Dipolpotential U_L des externen Feldes bildet ein effektives Potential U_{eff} :

$$U_{\text{eff}}(\mathbf{r}, t) = U_A + U_L = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Ze^2}{|\mathbf{r}|} - e\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)\mathbf{r} \quad (2.16)$$

Die über die optische Periode gemittelte Ionisationsrate, auch ADK-Rate Γ_{ADK} genannt [3], ist im Tunnelregime:

$$\Gamma_{\text{ADK}} = \left(\frac{3e}{\pi}\right)^{3/2} \frac{Z^2}{n^{*9/2}} \left(\frac{4eZ^3}{n^{*4}E}\right)^{2n^*-3/2} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^*E}\right) \quad (2.17)$$

mit der Kernladung Z , der angelegten Feldstärke E und der effektiven Quantenzahl $n^* = Z/\sqrt{2\epsilon_1(R)}$, wobei R den Atomabstand im Molekül darstellt. Hier hängt die Ionisationsrate exponentiell vom Reziproken der Feldstärke des elektrischen Feldes ab, das im Vergleich zur Multiphoton-Ionisation einer Abschwächung der Feldstärkenabhängigkeit und einer stärkeren Photonenenergieabhängigkeit gleichkommt, vgl. Abbildung 2.4.

⁴Die Intensität ist proportional zum Quadrat der Feldstärke. $I \propto E^2$

⁵Zur Ionisation sind N Photonen notwendig.

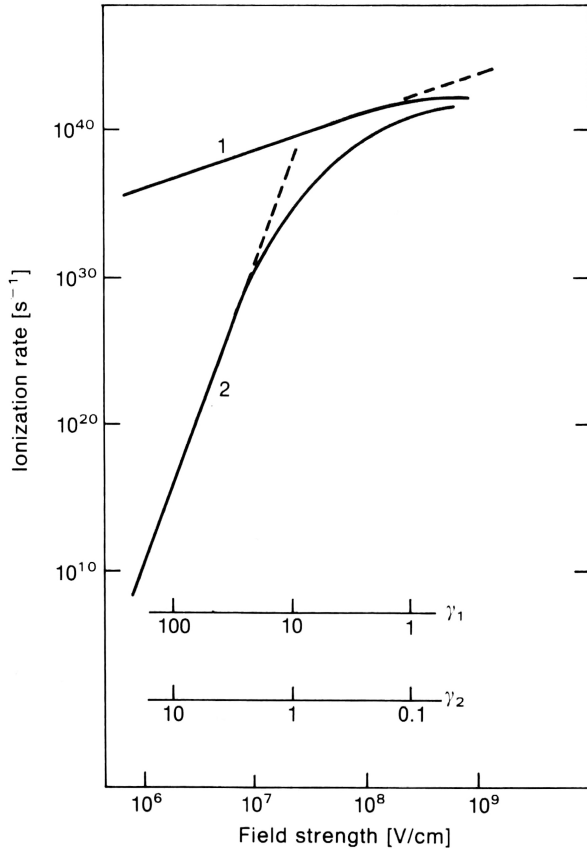


Abb. 2.4: **Keldysh-Parameter** **Kurve:**

Der Graph zeigt eine Berechnung der Ionisationsrate in Abhängigkeit der Feldstärke. Kurve 1 ($\omega_1 = 1 \text{ eV}$) und Kurve 2 ($\omega_2 = 0,1 \text{ eV}$) zeigen für gleiche Feldstärken im niedrigen Bereich $E \approx 10^6 \text{ V/cm}$ eine starke Abhängigkeit der Ionisationsrate von der Photonenenergie bei Wasserstoff. Der lineare Anstieg beider Kurven für höhere Felder $E \approx 10^7 \text{ V/cm}$ entspricht dabei der absorbierten Photonen $N_1 = 13$ und $N_2 = 116$ - entsprechend der Multiphoton-Ionisation. Steigen die Felder $E > 10^7 \text{ V/cm}$ weiter, flachen die Raten ab und es kommt zur Abweichung von der Ionisationsrate der Multiphoton-Ionisation (**gestrichelt**). Man gelangt in den Bereich der Tunnelionisation, die nur noch eine schwache Abhängigkeit von Feldstärke und Photonenenergie aufweist. Die Grafik ist entnommen aus [13].

Annahmen und Abschätzungen der Ionisationsmodelle

Häufig werden bei der Laser-Teilchen-Wechselwirkung die folgenden Annahmen getroffen. Sie gelten insbesondere für den NIR-VIS-Bereich:

1. Die Dipolnäherung $(\omega/c)a_0 \ll 1$ [20] des externen Feld mit dem Bohrschen Radius a_0 .
2. Single-Active-Electron-Approximation (SAE) entspricht der Annahme, dass das Strahlungsfeld bei Mehrelektronensystemen stets nur mit einem Elektron wechselwirkt.
3. Der Ansatz schwacher Felder kann mit der Gültigkeit der Störungsrechnung

$$z \equiv U_P / \hbar \omega \quad (2.18)$$

abgeschätzt werden [57, 58]. Für $z \ll 1$ dominiert die Photonenenergie die Feldefekte.

4. Beim Ansatz starker Felder (in der Keldysh- sowie der 'Strong-Field-Approximation')

Theorie (SFA)) liegt

$$z_i \equiv 2U_P/\varepsilon_I \quad (2.19)$$

im Bereich $z_i \approx 1$ [58]. Die Feldenergie und Bindungsenergie sind äquivalent.

5. Der Einfluss relativistischer Effekte erfolgt über den Vergleich des ponderomotiven Potentials mit der Ruhenergie des Elektrons [58]:

$$z_f \equiv U_P/mc^2 \quad (2.20)$$

Verhalten im XUV

Für die Ionisation im hochenergetischen Photonenbereich (hier bis 50 eV), dem Bereich der XUV-Strahlung, bedarf es einer Anpassung dieser Annahmen. Den Vergleich von verschiedenen Parametern der Starkfeldlaserphysik im XUV- und NIR-Bereich bei der Intensität $I \approx 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ zeigt Tabelle 2.1. Zwischen dem XUV-Bereich (z.B. $\lambda = 50 \text{ nm}$)

Parameter	im XUV	im NIR
pond. Potential ^a U_P	$\approx 0,024 \text{ eV}$	$\approx 12 \text{ eV}$
elektr. Feldstärke $ \mathbf{E}_0 $	$\approx 3,88 \cdot 10^8 \text{ V/m} \approx 0,07 \text{ a.u.}$	$\approx 0,07 \text{ a.u.}$
Osz.-amplitude ^b \mathbf{r}	$\approx 2,6 \cdot 10^{-14} \text{ m}$	$\approx 1,2 \cdot 10^{-11} \text{ m}$
Keldysh-Parameter ^c γ	$\approx 2,5$	$\approx 0,1$

Tab. 2.1.: **Parameter-Vergleich für XUV und NIR:** Wichtige Parameter der Starkfeldlaserphysik im Bereich der XUV bei 20...50 eV und im NIR bei 800 nm für eine Intensität von $I = 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

^aBerechnung: $9,3375 \cdot 10^{-8} [\text{eV}] \lambda^2 [\text{nm}^2] I [10^{12} \text{ W/cm}^2]$

^bBerechnung: $e|\mathbf{E}_0|/(m\omega^2)$

^cfür Xenon $\varepsilon_I = 12,13 \text{ eV}$

und dem NIR-Bereich (z.B. $\lambda = 800 \text{ nm}$) ist ein deutlicher Unterschied der Parameter bei gleicher Intensität zu erkennen. Insbesondere das ponderomotive Potential U_P ist für das NIR-Feld 500-fach stärker als im Fall der XUV-Strahlung. Man spricht folglich beim NIR-Feld von einem *starken* Feld geringer Photonenenergie und vieler Photonen. Für den XUV-Bereich ist das Verhalten umgekehrt. Das zeigt auch die Untersuchung der Annahmen im XUV-Bereich:

$$\begin{aligned} z &\equiv U_P/\hbar\omega \approx 7 \cdot 10^{-4} \\ z_i &\equiv 2U_P/\varepsilon_I \approx 4 \cdot 10^{-3} \\ z_f &\equiv U_P/mc^2 \ll 1 \end{aligned} \quad (2.21)$$

Die Ionisation durch XUV-Strahlung kann für Intensitäten von $I \approx 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ durch Multiphotonenprozesse beschrieben werden (Gleichung 2.15). Daneben können relativis-

tische Effekte vernachlässigt werden.

Photoabsorption im XUV

Die Absorption lässt sich mit dem Imaginärteil des Brechungsindex $n(\omega)$ beschreiben. Im XUV ist der Brechungsindex wegen der geringen Abweichung von 1, anders als im VIS, über

$$n = (1 - \delta) - i\beta \quad (2.22)$$

definiert. Dabei sind

$$\delta = \frac{Nr_e\lambda^2}{2\pi}f_1(\omega), \quad \beta = \frac{Nr_e\lambda^2}{2\pi}f_2(\omega) \quad (2.23)$$

Realteil δ und Imaginärteil β Funktionen des komplexen Streufaktors $f^0(\omega) = f_1^0(\omega) - if_2^0(\omega)$. Dieser ist ein Maß für das Streuvermögen eines Atoms für einfallende Photonen⁶. Weiterhin ist r_e der klassische Elektronenradius und N ist die Anzahl der Atome pro Einheitsvolumen. Die Absorption von XUV-Strahlung kann durch den Imaginärteil des Brechungsindex β beschrieben werden:

$$E \propto \exp\left(-\frac{2\pi\beta}{\lambda}r_e\right) \equiv \exp(-\alpha(\lambda)L) \quad (2.24)$$

Das Verhalten entspricht dem Lambert-Beerschen-Gesetz der Absorption für ein Medium der Länge L . Hierbei ist $\alpha(\lambda) = N\sigma(\lambda)$ der Wellenlängen-abhängige Absorptionskoeffizient, der aus der Dichte des Materials N und dem Wirkungsquerschnitt der Photoabsorption $\sigma(\lambda) = 2r_e\lambda f_2$ resultiert⁷. Für Gase lässt sich die Transmission $T(\lambda)$ mit der vorliegenden Teilchendichte N_1 und der Teilchendichte unter Normalbedingung $N_0 = 2,5 \cdot 10^{19} \text{ 1/cm}^3$ verrechnen:

$$T(\lambda) = \exp\left(-\sigma(\lambda)L\frac{N_1}{N_0}\right) \quad (2.25)$$

Für den XUV-Bereich liegen die Wirkungsquerschnitte der Photoabsorption deutlich über denen des NIR-Bereiches, was typischerweise zu Absorptionslängen von wenigen hundert Nanometern führt. Ein Resultat dessen ist die Vermeidung von transmittiven Optiken für Strahlung im XUV-Bereich.

⁶Tabelliert in [30].

⁷Tabelliert u.a. in [7, 73]

2.3. Erzeugung von XUV-Attosekundenpulsen an dichten Oberflächenplasmen

Dieser Abschnitt behandelt die Erzeugung von Attosekundenpulsen an Oberflächenplasmen. Man spricht auch von 'Surface High Harmonic Generation' (SHHG), da die erzeugte XUV-Strahlung im Spektrum Harmonische der Fundamentalfrequenz aufweist. Dabei wird zwischen den Harmonischen zweier unterschiedlicher Erzeugungsprozesse an Oberflächenplasmen - 'Relativistic Oscillation Mirror' (ROM) und 'Coherent Wake Emission' (CWE) - unterschieden.

2.3.1. Lasererzeugte Plasmen

Ein Plasma ist ein Vielteilchensystem von geladenen Teilchen als auch neutralen Teilchen. Zusammen besitzen sie ein kollektives Verhalten, hervorgerufen durch die bewegten Ladungen und deren Coulombkräfte. Das Plasma kann z.B. durch auf Materie fokussierte intensive Laserstrahlung erzeugt werden. Dabei wird die Zerstörschwelle der Oberfläche überschritten und es setzt eine massive Ionisation und Ablation des Mediums ein. Bereits ab Intensitäten von $I \approx 10^{13} \text{ W/cm}^2$ [44] finden diese Ionisationsprozesse statt, bei denen sich ein Plasma auf der Oberfläche ausbildet. Für intensive Laserstrahlung mit $I_{\text{Peak}} \gg 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bedeutet dies, dass sich das Plasma bereits in der ansteigenden Pulsflanke bzw. durch Vorpulse ausbilden kann. Das Plasma besitzt eine Elektronendichte $n_{e,0}$, die abhängig vom Material ist [25]

$$n_{e,0} = \frac{Z^* N_A \rho}{A} \quad (2.26)$$

mit der effektiven Ionenladung Z^* , der Avogadro-Konstante N_A , der Materialdichte ρ und der atomaren Massenzahl A . Eine Erhöhung der Materialdichte führt dabei im Allgemeinen zur Erhöhung der Elektronendichte.

Das erzeugte Plasma besitzt eine gewisse Temperatur und dehnt sich in Folge aus. Die Ausdehnung eines Plasmas, das von einer stufenförmigen Dichteverteilung entsteht, kann mit der Vlasov-Gleichung berechnet werden [43] und nimmt ein exponentielles Dichteprofil

$$n_e(x) = n_{e,0} \exp\left(-\frac{x}{c_s t}\right) \quad (2.27)$$

an. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit ist die Ionen-Schallgeschwindigkeit c_s , welche u.a. von der Elektronentemperatur T_e abhängig ist [25, 60]. Die Ausdehnung des Plasmas wird durch die Plasmaskalenlänge $L_P = c_s t$ beschrieben.

Optische Eigenschaften von Plasmen

Die Elektronendichte bestimmt auch die optischen Eigenschaften eines Plasmas. Die Elektronen schwingen gegenüber den Ionen mit der Plasmafrequenz ω_P :

$$\omega_P = \sqrt{\frac{n_e(x)e^2}{\epsilon_0 m}} \quad (2.28)$$

Aufgrund der existierenden Ströme $\mathbf{j} = -en_e \mathbf{v}$ ergibt die Helmholtzgleichung

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{A} = \omega_P^2 \mathbf{A} \quad (2.29)$$

die Dispersionsrelation

$$\omega^2 = \omega_P^2 + k^2 c^2 \quad (2.30)$$

mit dem Brechungsindex

$$\eta(\omega) = \frac{ck}{\omega} = \sqrt{1 - \frac{\omega_P^2}{\omega^2}} \quad (2.31)$$

Offensichtlich ist für verschiedene Laserfrequenzen $\omega > \omega_P$ und $\omega < \omega_P$ der Brechungsindex reell bzw. rein imaginär. Für den ersten Fall ist eine Propagation im Plasma möglich und für den zweiten können nur evaneszente Wellenanteile im Plasma existieren - die Laserstrahlung wird hier im Wesentlichen reflektiert.

Aus der kritischen Elektronendichte

$$n_c = \frac{\epsilon_0 m \omega^2}{e^2} \quad (2.32)$$

für $\omega = \omega_P$, dem Übergang vom reellen zum rein imaginären Brechungsindex, lässt sich die Reichweite der Laserstrahlung im Plasma ermitteln. Für die 'unterkritischen' Elektronendichten $n_e < n_c$ kann die Laserstrahlung im Plasma propagieren. Für 'überkritische' Plasmen $n_e > n_c$ propagiert der Laser nur bis zur Skintiefe $L_s \approx c/\omega_P$, dem $1/e$ -Wert des elektrischen Feldes im Plasma⁸ und wird reflektiert. In Abbildung 2.5 ist der Verlauf des Laserfeldes für ein stufenförmiges Plasma (a) und ein Plasma mit einer linearen Rampe (b) gegenübergestellt.

Die während dieser Arbeit verwendeten Materialien sind Gläser bzw. Kunststoffe mit den dazugehörigen Elektronendichten von $400 n_c$ ($\omega_P \approx 20 \omega_L$) bzw. $200 n_c$ ($\omega_P \approx 14 \omega_L$). Aufgrund ihrer überkritischen Elektronendichten reflektieren sie im ionisierten Zustand einen Großteil der einfallenden Laserstrahlung - ähnlich zu einem metallischem Spiegel.

⁸Die Näherung der Skintiefe gilt streng genommen nur für hohe Elektronendichten und nichtrelativistische Plasmen.

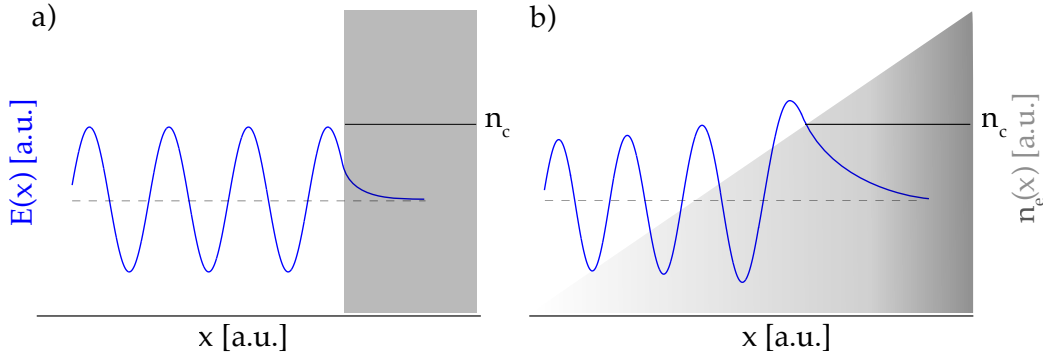


Abb. 2.5.: **Reflexion von Laserlicht an einem Plasmaprofil:** (a) Die Laserstrahlung (blau) kommt von links und trifft ein stufenförmiges Plasma (grau) mit einer überkritischen Dichte. An ihr kann die Strahlung nicht weiter propagieren und wird folglich direkt an der Oberfläche reflektiert. (b) Die einfallende Laserstrahlung trifft auf ein Plasma dessen Elektronendichte linear verläuft. Hier gelangt die Strahlung im Plasma etwa bis zur kritischen Dichte n_c und wird dann erst reflektiert. Aus [8].

2.3.2. Relativistische Lasererzeugte Plasmen

Die Elektronen im Plasma können durch den Laser zu Oszillationsbewegungen getrieben werden. Ihre (klassische) Geschwindigkeit kann mithilfe des normierten Vektorpotentials

$$a_0 = \frac{e|\mathbf{A}|}{mc} = \frac{e\omega|\mathbf{E}|}{mc} \equiv \frac{v_{\text{klass}}}{c} \quad (2.33)$$

berechnet werden und entspricht (klassisch) maximal der Lichtgeschwindigkeit. Das normierte Vektorpotential kann auch über die Intensität I und Laserwellenlänge λ definiert werden:

$$a_0 = \sqrt{\frac{I[\text{W}/\text{cm}^2]\lambda^2[\mu\text{m}^2]}{1,37 \cdot 10^{18}}} \quad (2.34)$$

Bei nichtrelativistischer Betrachtung würde ein Elektron bei $a_0 = 1$ Lichtgeschwindigkeit erreichen. Insbesondere für $a_0 > 1$ kann die Elektronenbahn nicht mehr mit der Newtonschen Bewegungsgleichung beschrieben werden und wird stark relativistisch:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\gamma m \mathbf{v}) = -e(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (2.35)$$

Hier erfolgt eine zusätzliche Korrektur durch den γ -Faktor, mit $\gamma = 1/\sqrt{1 - v^2/c^2}$, der den relativistischen Massenzuwachs beschreibt. Eine weitere Korrektur erfolgt durch den Lorentz-Term, der als charakteristische $(\mathbf{v} \times \mathbf{B})$ -Oszillation in Erscheinung tritt und bei hohen Intensitäten nicht mehr vernachlässigt werden kann. Der Lorentz-Term beschreibt eine zusätzliche Bewegung in longitudinaler Richtung z (Abbildung 2.6). Der Übergang zum relativistischen Bereich liegt für eine Mittenwellenlänge von $\lambda \approx 800 \text{ nm}$ bei $I \approx 2,1 \cdot 10^{18} \text{ W}/\text{cm}^2$.

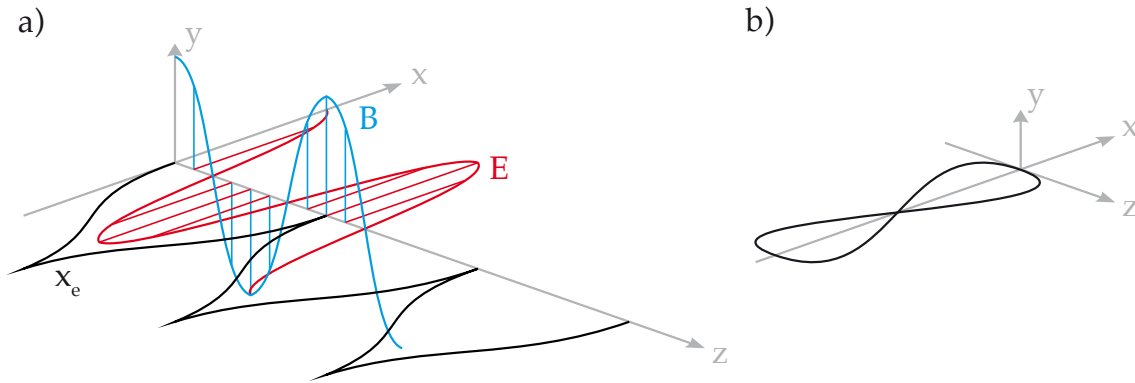


Abb. 2.6.: **Elektronenbewegung im relativistischen Fall:** ((a) Laborsystem) Die Trajektorie (**schwarz**) des freien Elektrons zeigt neben der transversalen Oszillation auch eine vom $(\mathbf{v} \times \mathbf{B})$ -Term verursachten Drift in longitudinaler Richtung z . Wird das Elektron mit zunehmendem elektrischen Feld (**rot**) ausgelenkt, steigt die Geschwindigkeit des Elektrons. Dadurch nimmt der Einfluss des Magnetfeldes (**blau**) zu und lenkt das Elektron in Strahlrichtung ab. Die zyklische Abnahme und Umpolung des elektrischen Feldes bremst das Elektron transversal ab und resultiert in einem abnehmenden longitudinalen Drift. Ist die transversale Bewegung zum Erliegen gekommen, wird das Elektron in die entgegengesetzte transversale Richtung beschleunigt und der zyklische Prozess beginnt von vorn. ((b) mitbewegtes Bezugssystem) Die Bahn des Elektrons entspricht einer Achterbewegung.

2.3.3. Erzeugung von Oberflächenharmonischen

Bei der Erzeugung von Oberflächenharmonischen unterscheidet man für die relevanten Parameter zwei Erzeugungsmechanismen. Einerseits ist das der Prozess der 'Coherent Wake Emission' (CWE) und andererseits der Prozess des 'Relativistic Oscillating Mirror' (ROM).

CWE-Prozess

Im Laserfeld werden die Elektronen zyklisch von der Oberfläche weg und anschließend in das Plasma getrieben. Da das Laserfeld innerhalb des Plasmas stark gedämpft ist, können die Elektronen tief in das Plasma eindringen. Diese Elektronen regen besonders an scharfen Plasmadichteprofilen $L_P \ll \lambda$ Dichtemodulationen im überkritischen Plasma an. Die so entstandenen Plasmaoszillationen emittieren entlang des Dichtegradienten elektromagnetische Strahlung. Diese Attosekundenpulse, die im Plasma erzeugt werden, nennt man CWE-Harmonische. Aufgrund der Tatsache, dass die Elektronendichte ein ortsabhängiges Profil aufweist, werden unterschiedliche Frequenzanteile der CWE-Harmonischen in unterschiedlichen Plasmataiefen erzeugt. Die CWE-Harmonischen sind folglich gechirpt und können lediglich bis zur maximalen Plasmafrequenz erzeugt werden. Unter Verwendung von Laserpulsen mit mehreren Zyklen werden die Attosekundenpulse periodisch emittiert und bilden somit einen Pulszug [72]. Die zeitliche Struktur der Attosekundenpulse wurde

in einem Autokorrelationsexperiment vermessen. Ihre Pulsdauer beträgt etwa 900 as [51].

ROM-Prozess

Unter Einstrahlung eines sehr intensiven Laserpulses schwingen die Elektronen an der Plasmaoberfläche⁹ mit der Laserfrequenz. Der Laserpuls wird folglich an einer relativistisch oszillierenden Oberfläche reflektiert. Diese Plasmaoberfläche erreicht für relativisti-

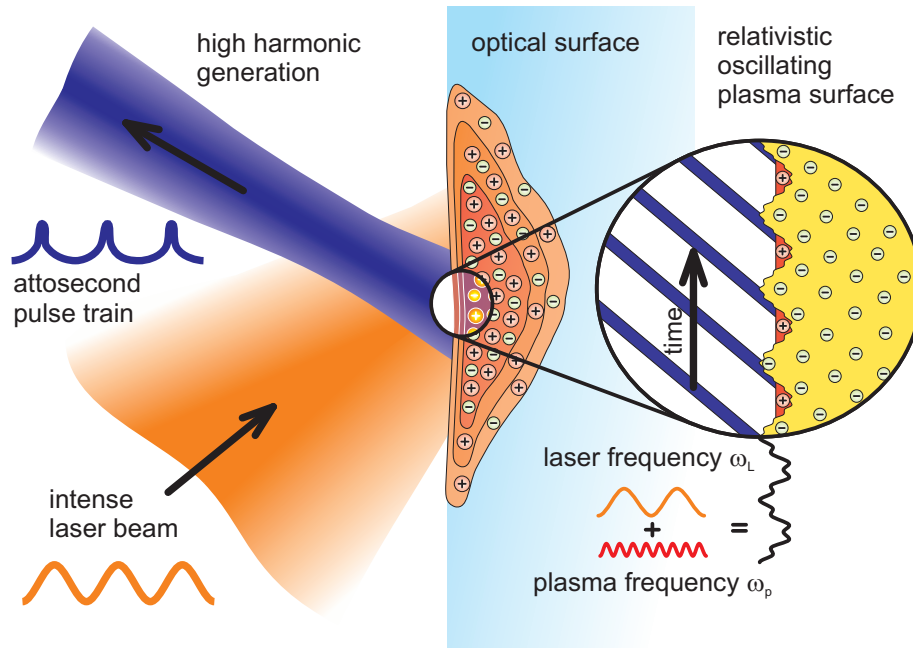


Abb. 2.7.: **Prinzip des 'Relativistic Oscillating Mirror':** Der Vorpuls des einfallenden Laserlichts (orange) bzw. die ansteigende Flanke des Hauptpulses ionisiert die Targetoberfläche und erzeugt ein Plasma. Das Laserfeld regt das gezündete Plasma zum Oszillieren an. Die Form der Oberflächenoszillation resultiert dabei aus der Laserfrequenz ω_L und der Plasmafrequenz ω_p . Für relativistische Intensitäten von $a_0 > 1$ oszillieren die Elektronen an der Plasmaoberfläche n_c mit relativistischen Geschwindigkeiten. Das Laserfeld wird an der relativistisch oszillierenden Oberfläche reflektiert und erfährt dabei eine Frequenzkonversion (blau) im Attosekundenbereich. Die zyklisch erzeugten Attosekundenpulse bilden über einen Mehrzyklen-Laserpuls einen Pulszug und weist im Frequenzraum Harmonische auf. Aus [62].

sche Intensitäten von $a_0 > 1$ auch relativistische Geschwindigkeiten - man spricht deshalb auch vom relativistisch oszillierenden Spiegel. Das reflektierte Feld wird somit moduliert und erfährt dabei eine periodische Frequenzkonversion in Analogie zum relativistischen Doppler-Effekt $\propto \gamma_{\max}^2$. Da die Reflexion an dieser relativistischen Oberfläche innerhalb einer kurzen Zeit $\Delta t \propto \gamma_{\max}^{-1} \approx \Delta\omega^{-1}$ erfolgt, beträgt die maximale Harmonischenfre-

⁹ungefähr an der Position der kritischen Dichte n_c

quenz¹⁰ in etwa (Roll-Off):

$$\omega_{\text{RO}} \approx \sqrt{8} \gamma_{\text{max}}^3 \omega \quad (2.36)$$

Die Reflexion und Frequenzverschiebung erfolgt in der Zeitskala von Attosekunden, so dass bei einem Mehrzyklen-Puls ein Zug aus Attosekundenpulsen entsteht, siehe Abbildung 2.7. Dieser Pulszug weist infolge seiner Periodizität im Frequenzraum hohe Harmonische der fundamentalen Laserfrequenz auf. Sie werden aufgrund ihrer Erzeugung ROM-Harmonische genannt. Laut Simulationen besitzen sie einen vernachlässigbaren Chirp und können bei stark relativistischen Intensitäten sehr effizient erzeugt werden.

Nach der experimentell bestätigten BGP-Theorie [5, 15] kann die Effizienz des Spektrums $I/I_0(\omega)$ im ultrarelativistischen Grenzfall durch

$$I/I_0 \propto n^{-8/3} \quad (2.37)$$

beschrieben werden. Hierbei ist $n = \omega/\omega_0$ die Ordnung der Harmonischen. Experimentelle Untersuchungen bei moderat relativistischen Intensitäten $a_0 \approx 3$ ergaben, dass die absolute Effizienz allerdings deutlich geringer ist. Typischerweise beträgt die Effizienz für $a_0 \approx 2$ rund $10^{-5} \dots 10^{-7}$ für 50 nm bzw. 26 nm. Das entspricht einer Pulsenergie von $1 \mu\text{J}$ bzw. 10 nJ pro Harmonische [9, 61]. Die Divergenz der Harmonischenstrahlung bei der Erzeugung mit einem $f/2$ -Parabolspiegel konnte zu 19 mrad (FWHM) bestimmt werden [14, 61].

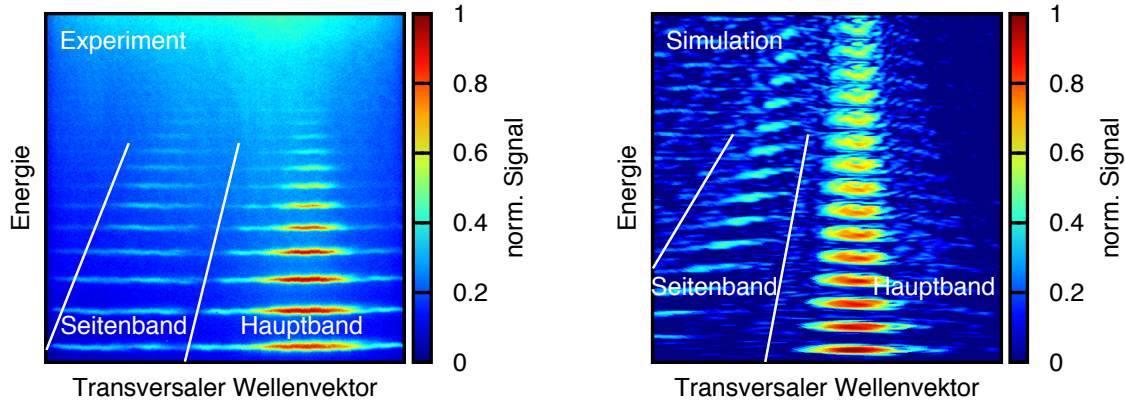


Abb. 2.8.: **Seitenband-Emission der Oberflächenharmonischen bei niederdichten Targets $n_{e,0} = 40 n_c$:** Infolge der Existenz von Oberflächenwellen bei Plasmen kommt es neben der Emission von Oberflächenharmonischen in Richtung des Wellenvektors des treibenden Lasers (Hauptband) auch zu Emissionen in räumliche Seitenbänder [4, 54]. Die Simulation stammt aus [54].

Während der Diplomarbeit am CEA Saclay durchgeführte Messungen ergaben außerdem, dass zusätzlich zur Emission entlang der Strahlachse auch in räumliche Seitenbänder emit-

¹⁰Bei genauerer Betrachtung fällt das Harmonischenspektrum nach dieser Frequenz exponentiell ab.

tiert wird. PIC-Simulationen bestätigen diesen Effekt [4, 54], siehe Abbildung 2.8.

Die zeitliche Struktur der ROM-Harmonischen wurde bisher ausschließlich mithilfe von Simulationen untersucht [6, 74]. Für die Simulation mit Parametern des *JETI*-Experiments liegen die Pulsdauern im Bereich von 100 as bis 300 as [6].

Da der Erzeugungsprozess der ROM-Harmonischen nur mit dem maximalen γ -Faktor und somit fast ausschließlich mit der Intensität skaliert, gelten die Limitierungen der CWE-Harmonischen nicht. Stattdessen besteht die Hoffnung, mit derzeit verfügbaren Intensitäten ($a_0 \geq 20$) ROM-Harmonische bis in den keV-Bereich (weiche Röntgen-Strahlung) zu erzeugen. Diese Röntgen-Pulse sollten sehr intensiv sein und Pulsdauern im Bereich weniger Attosekunden besitzen. Diese Eigenschaften machen die ROM-Harmonischen damit zu einer sehr interessanten Strahlquelle für Experimente in der Attosekundenphysik, siehe Tabelle 2.2.

Parameter	CWE	ROM
spektrales Verhalten	$\omega_{\text{Cut-Off}} = \omega_P$	$I/I_0 \propto n^{-8/3}$ (ultra-relativistisch)
spektrale Phase	intrinisischer Chirp	glatte Phase
Pulsdauer	$\approx 800 \text{ as}^a$	$\approx 100 \text{ as}^b$

^aDas gilt für Parameter ähnlich unseren. Gemessen [51]

^bDas gilt für Parameter ähnlich unseren. Simuliert [6]

Tab. 2.2.: Vgl. von CWE und ROM-Harmonischen bei *JETI*-Parametern: Die CWE-Harmonischen besitzen mit der Plasmafrequenz ω_P eine charakteristische Cut-Off-Frequenz. Die ROM-Harmonischen können bei ultra-relativistischen Intensitäten sehr effizient erzeugt werden und die Pulsdauern sind Fourier-limitiert. Die CWE-Harmonischen besitzen hingegen einen Chirp, so dass die Pulsdauern viele hundert Attosekunden betragen. Gegenüberstellung von CWE- und ROM-Harmonischen im spektralen Verhalten, spektraler Phase und Pulsdauer.

3. Messmethodik: Autokorrelation

In diesem Kapitel sollen Methoden diskutiert werden, die der Charakterisierung der zeitlichen Struktur von intensiven Attosekundenpulsen dienen können. Dabei wird zunächst ein kurzer Überblick diverser Messmethoden für die Pulsdauerbestimmung gegeben und deren Limitierung bzw. Probleme für die ROM-Harmonischen aufgezeigt. Insbesondere wird auf das verwendete Verfahren der nichtlinearen Autokorrelation eingegangen.

3.1. Gängige Verfahren

Die Vermessung von Pulsdauern kann auf verschiedene Weise umgesetzt werden. Entweder erfolgt die Messung direkt über einen zeitaufgelösten Detektor oder indirekt über einen abzutastenden Prozess mit einem zeitintegrierenden Detektor.

Für eine direkte Methode werden jedoch Detektoren mit kürzeren Zeitkonstanten als der Pulsdauer benötigt. Die kürzesten Schaltkonstanten von elektronischen Systemen liegen derzeit im Bereich weniger 10 Pikosekunden [28] und sind damit gänzlich ungeeignet für die Auflösung der Pulsdauern im Bereich von Femtosekunden oder gar Attosekunden.

Eine indirekte Methode zur Charakterisierung von Attosekundenpulsen ist die Streak-Kamera, bei der der Attosekundenpuls bzw. die durch dessen Ionisation freigesetzten Elektronen von einem synchron eingestrahlten langsam oszillierenden Laserfeld beeinflusst werden [35, 40, 27]. Anhand des Photoelektronenspektrums als Funktion des zeitlichen Versatzes dieser Felder kann dann die Pulsdauer des XUV-Pulses vermessen werden. Eine Realisierung dieses Verfahrens für die zeitliche Vermessung von ROM-Harmonischen ist allerdings sehr anspruchsvoll und mit einigen technischen Komplikationen verbunden. Das liegt insbesondere an der notwendigen Synchronisation des XUV-Pulses mit dem Laserpuls mit einer Genauigkeit von wenigen Attosekunden bzw. wenigen Nanometern. Da die ROM-Harmonischen an einer bewegten Glasoberfläche erzeugt werden, muss diese Oberfläche auch mit einer Genauigkeit von Nanometern stabilisiert werden. Das ist mit großem Aufwand verbunden, weshalb die Methode der Streak-Kamera in dieser Arbeit nicht verwendet wird.

Eine weitere indirekte Methode ist die Autokorrelation, bei der der Attosekundenpuls mit sich selbst abgetastet wird. Dazu wird der zu vermessende Puls in einem interferometrischen Aufbau in zwei Pulsreplika zerlegt und der optische Laufweg für eine der beiden

Pulshälften variiert. Anschließend werden beide Pulshälften wieder überlagert und zur Interferenz gebracht. Ein zeitintegrierender Detektor registriert dabei eine lineare Feldkorrelation. Eine nichtlineare Autokorrelation zur Vermessung der Pulsdauer kann erzielt werden, wenn man als Messgröße nichtlineare Prozesse (wie z.B. auch SHG bei SPIDER [21] bzw. FROG [38]) verwendet. Neben den nichtlinearen Konversionsprozessen, z.B. in nichtlinearen Kristallen, können für die Autokorrelation prinzipiell auch nichtlineare Ionisationsprozesse zum Einsatz kommen [49, 65, 51].

Für die intensiven XUV-Pulse kommen als nichtlineares Medium nur nichtlineare Ionisationsprozesse in Frage [75]. Diese Technik der XUV-Puls-Autokorrelation [41, 52] ist bereits für Gasharmonische [49, 65] und CWE-Harmonische [51] durchgeführt worden. Diese Messmethode soll auch für die ROM-Harmonischen realisiert werden. In Abbildung 3.1 ist das Verfahren schematisch dargestellt.

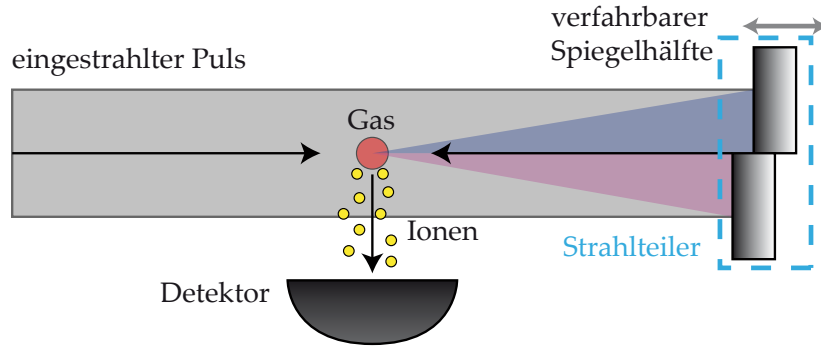


Abb. 3.1.: **Prinzipskizze der nichtlinearen Autokorrelation:** Der einfallende Puls passiert in defokussierter Form das Ionisationsgebiet und wird anschließend durch einen geteilte sphärischen Spiegel zurück in das Gas fokussiert. Die zweite Spiegelhälfte kann versetzt werden, so dass ein zeitlicher Versatz der Pulsreplika realisiert werden kann.

3.2. Lineare Autokorrelation & Kohärenz

Bei der linearen Autokorrelation bzw. linearen Feldkorrelation bzw. interferometrischen Autokorrelation 1.Ordnung wird der Puls mit sich selbst vermessen. Die Umsetzung kann über einen Aufbau ähnlich dem Michelson-Interferometer erfolgen, siehe Abbildung 3.2. Ein Feld $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0(t) \exp(-i\omega t)$ mit der zeitabhängigen Einhüllenden $\mathbf{E}_0(t)$ und dem Phasenterm $\exp(-i\omega t)$ wird über einen (idealen) Strahlteiler in zwei Replika $\mathbf{E}_A = \frac{1}{2} \mathbf{E}(t)$ und $\mathbf{E}_B = \frac{1}{2} \mathbf{E}(t)$ zerlegt:

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_A(t) + \mathbf{E}_B(t) \quad (3.1)$$

Die Replika durchlaufen jeweils einen Interferometerarm. Der optische Laufweg bleibt dabei in einem Arm konstant $\mathbf{E}_A = \frac{1}{2} \mathbf{E}(t)$ und wird im anderen $\mathbf{E}_B = \frac{1}{2} \mathbf{E}(t - \tau_A)$ verändert. Die Größe τ_A entspricht dabei dem zeitlichen Versatz. Das Feld der verschobenen

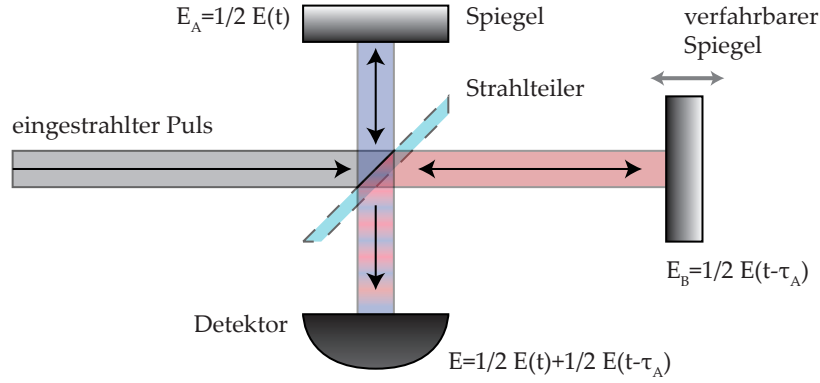


Abb. 3.2.: **Prinzipskizze des interferometrischen Autokorrektors 1. Ordnung:** Dieser Autokorrektor basiert auf dem Prinzip des Michelson-Interferometers. Der einkommende Puls wird über einen Strahlteiler in zwei Replika (hier **dunkelblau** und **rot**) zerlegt. Die zeitliche Verzögerung einer Pulshälfte erfolgt in einem der beiden Interferometerarme. Die Überlagerung der zeitlich versetzten Replika wird vom Detektor aufgenommen.

Pulshälfte

$$\mathbf{E}(t - \tau_A) = \underbrace{\mathbf{E}_0(t - \tau_A)}_{\text{Einhüllende}} \underbrace{\exp(-i\omega t)}_{\text{Phase}} \underbrace{\exp(+i\omega\tau_A)}_{\text{zus. Phasenversatz}} \quad (3.2)$$

besitzt neben der veränderten Einhüllenden $\mathbf{E}_0(t - \tau_A)$ auch eine um $\exp(+i\omega\tau_A)$ angepasste Phase. Die Überlagerung beider Replika erzeugt ein Gesamtfeld, das zusätzlich vom zeitlichen Versatz der verschobenen Pulshälfte abhängig ist:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(t, \tau_A) &= \frac{1}{2} \mathbf{E}(t) + \frac{1}{2} \mathbf{E}(t - \tau_A) \\ &= \frac{1}{2} \exp(-i\omega t) \left[\mathbf{E}_0(t) + \mathbf{E}_0(t - \tau_A) \exp(+i\omega\tau_A) \right] \end{aligned} \quad (3.3)$$

Das von einem zeitintegrierenden Detektor aufgenommene Gesamtsignal

$$\begin{aligned} \mathfrak{S}_1(\tau_A) &= \int_{-\infty}^{\infty} \mathfrak{s}_1(\tau_A, t) dt \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt |\mathbf{E}(t) + \mathbf{E}(t - \tau_A)|^2 \\ &= \dots = \underbrace{\int_{-\infty}^{\infty} dt |\mathbf{E}(t)|^2 + \int_{-\infty}^{\infty} dt |\mathbf{E}(t - \tau_A)|^2}_{\text{Offset} \quad \equiv \int_{-\infty}^{\infty} dt |\mathbf{E}(t)|^2} + \underbrace{\int_{-\infty}^{\infty} dt \left[\mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{E}(t - \tau_A) + k.k. \right]}_{\text{Autokorrelationsterm}} \end{aligned} \quad (3.4)$$

entspricht dabei der zeitlich gemittelten Leistung [48]. Darin ist $\mathfrak{s}_1(\tau_A, t) \propto |\mathbf{E}(t) + \mathbf{E}(t - \tau_A)|^2$ das momentane Signal zum Zeitpunkt t . Das Gesamtsignal ist dabei eine Überlagerung der quadratischen Terme $|\mathbf{E}(t)|^2$ und $|\mathbf{E}(t - \tau_A)|^2$ mit dem Mischterm (auch Autokorrelationsterm) $\mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{E}(t - \tau_A)$. Für die quadratischen Terme verschwindet durch Substitution die τ_A -Abhängigkeit, so dass diese Term beim Verfahren von τ_A einen kon-

stanten Offset bilden. Der Autokorrelationsterm ist mit der Kohärenz verknüpft und entspricht als zeitliche Mittelung

$$G(\tau_A) = \langle \mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{E}(t - \tau_A) \rangle = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T \mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{E}(t - \tau_A) dt \quad (3.5)$$

der zeitlichen Kohärenzfunktion $G(\tau_A)$ bzw. Autokorrelationsfunktion [64]. Über den Grad der zeitlichen Kohärenz bzw. der normierten Autokorrelationsfunktion

$$g(\tau_A) = \frac{\langle \mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{E}(t - \tau_A) \rangle}{\langle \mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{E}(t) \rangle} \quad (3.6)$$

lässt sich die Fähigkeit zur Interferenz bestimmen. Liegt eine vollständige Kohärenz der Teilfelder vor, so ist $g(\tau_A) = 1$. Der Abfall des Kohärenzgrades wird oft mit einer Gaußfunktion beschrieben:

$$g(\tau_A) = \exp \left[-4 \ln 2 \left(\frac{\tau_A}{\tau_C} \right)^2 \right] \quad (3.7)$$

Die Kohärenzzeit τ_C entspricht dabei der FWHM-Breite¹ des Kohärenzgrades. Für Fourierlimitierte Pulse entspricht die Kohärenzzeit der Pulsdauer.

Wiener-Khinchin-Theorem

Das Wiener-Khinchin-Theorem verknüpft die Kohärenzfunktion $G(\tau_A)$ mit der spektralen Feldverteilung $S(\omega)$ (Spektrum):

$$S(\omega) = \frac{\varepsilon_0 n c}{2} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G(\tau_A) \exp(i\omega t) dt \quad (3.8)$$

Mit dem Zusammenhang lässt sich für ein gegebenes Spektrum die Kohärenzzeit bestimmen. Für ein Gaußförmiges Spektrum (siehe Abschnitt A):

$$S(\omega) = I \sqrt{\frac{4 \ln 2}{\pi \Delta \omega^2}} \exp \left[-4 \ln 2 \left(\frac{\omega - \omega_0}{\Delta \omega} \right)^2 \right] \quad (3.9)$$

kann durch inverse Fourier-Transformation die Kohärenzfunktion

$$\begin{aligned} G(\tau_A) &= \frac{2}{\varepsilon_0 n c} \int_{-\infty}^{\infty} S(\omega) \exp(-i\omega t) dt \\ &= \dots \propto \underbrace{\exp \left(-\frac{\tau_A^2 \Delta \omega^2}{16 \ln 2} \right)}_{g(\tau_A)} \exp(-i\omega_0 \tau_A) \end{aligned} \quad (3.10)$$

¹ Alternativ lässt sich die Kohärenzzeit mit der Breite des Leistungsäquivalentes ($\tau_C = \int_{-\infty}^{\infty} |g(\tau_A)|^2 d\tau_A$) definieren.

berechnet werden. Aus dem Grad der zeitlichen Kohärenz $g(\tau_A)$ lässt sich der Zusammenhang zwischen der spektralen Bandbreite $\Delta\omega$ und der Kohärenzzeit τ_C herstellen (Gleichung B.4):

$$\tau_C = \frac{8 \ln 2}{\Delta\omega} \quad (3.11)$$

Die Kohärenzzeit verhält sich umgekehrt proportional zur spektralen Bandbreite. Für Fourier-limitierte Pulse (mit konstanter bzw. linearer spektraler Phase) bedeutet dies, dass die Pulsdauer der Feldverteilung² τ_E der Kohärenzzeit entspricht:

$$\tau_E = \tau_C \quad (3.12)$$

Phasenabhängigkeiten höherer Ordnung wie z.B. die GDD verbreitern die Pulsdauer (Gleichung 2.12) ohne dabei das Spektrum zu beeinflussen. In dem Fall übersteigt die Pulsdauer die Kohärenzzeit:

$$\tau_E > \tau_C \quad (3.13)$$

Die Verknüpfung der linearen Autokorrelation mit dem Kohärenzgrad $g(\tau_A)$ hat zur Folge, dass mit der linearen Autokorrelation nur das Spektrum bzw. dessen Kohärenzzeit τ_C gemessen wird. Die reale (nicht Fourier-limitierte) Pulsdauer kann hingegen nicht bestimmt werden.

Beispiel der linearen Autokorrelation

Als Beispiel der linearen Autokorrelation soll ein Gaußförmiges Spektrum (Gleichung 2.4)

$$\mathcal{E}(\omega) = 1 \exp \left(-4 \ln 2 \frac{(\omega - \omega_0)^2}{\Delta\omega^2} \right) \exp(i\varphi(\omega)) \quad (3.14)$$

mit einer spektralen Phase (linearer Chirp) (Gleichung 2.8)

$$\varphi(\omega) = \frac{1}{2} \text{GDD}(\omega - \omega_0)^2 \quad (3.15)$$

verwendet werden. Davon ausgehend soll die zeitliche Autokorrelationsfunktion bestimmt werden. Dabei ist ω_0 die Mittenfrequenz und $\Delta\omega$ die spektrale Breite (FWHM). Die spektrale Verteilung $\mathcal{E}(\omega) \equiv \text{FT}[\mathbf{E}(t)]$ ist über die Fourier-Transformation mit der zeitlichen Feldverteilung $\mathbf{E}_0(t)$ verknüpft. Der Autokorrelationsterm $\text{AC} = \int_{-\infty}^{\infty} dt \mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{E}(t - \tau_A)$ lässt sich unter Verwendung des Faltungstheorems (Gleichung A.4) und dem

²Für die Pulsdauer der Intensitätsverteilung τ_I gilt dabei $\tau_I = \tau_E/\sqrt{2}$.

Zusammenhang von Kohärenzzeit und spektraler Breite zu

$$\begin{aligned}
 \text{AC} &= \text{FT}^{-1} \left[\text{FT} \left[\int_{-\infty}^{\infty} dt \mathbf{E}^*(t) \cdot \mathbf{E}(t - \tau_A) \right] \right] \\
 &= \sqrt{2\pi} \text{FT}^{-1} [\text{FT} [\mathbf{E}^*(t)] \cdot \text{FT} [\mathbf{E}(t - \tau_A)]] \\
 &\equiv \sqrt{2\pi} \text{FT}^{-1} [\mathcal{E}^*(\omega) \cdot \mathcal{E}(\omega)] = \sqrt{2\pi} \text{FT}^{-1} [|\mathcal{E}(\omega)|^2] \\
 &\propto \exp \left(-\frac{\tau_A^2 \Delta\omega^2}{8 \cdot 4 \ln 2} \right) \exp(-i\omega_0 \tau_A) \\
 &= \exp \left(-2 \ln 2 \left(\frac{\tau_A}{\tau_{E0}} \right)^2 \right) \exp(-i\omega_0 \tau_A) \\
 &= \underbrace{\exp \left(-\ln 2 \left(\frac{\tau_A}{\tau_{P0}} \right)^2 \right)}_{\text{Einhüllende}} \underbrace{\exp(i\omega_0 \tau_A)}_{\text{Oszillation}}
 \end{aligned} \tag{3.16}$$

berechnen und ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Aufgrund des Betragsquadrates der spektralen Verteilung (rot markiert) verliert man bei der linearen Autokorrelation die Information über die spektrale Phase. Pulsverbreiternde Phaseneinflüsse, wie die GDD, werden somit nicht vermessen und die FWHM-Breite der Einhüllenden der linearen Autokorrelation beschreibt daher nur die Fourier-limitierte Pulsdauer der Intensitätsverteilung³ τ_{P0} . Die Autokorrelationsfunktion oszilliert darüber hinaus mit der Trägerfrequenz ω_0 .

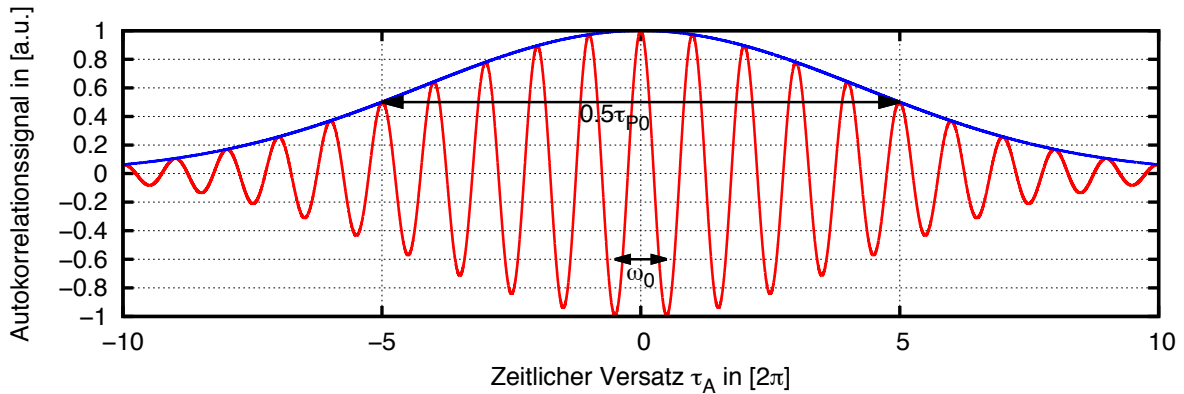


Abb. 3.3.: **Bsp. eines Signal für einen lin. Autokorrelator:** Die Einhüllende des Autokorrelationssignal (blau) eines 20-Zykluspulses besitzt eine FWHM-Breite von 10 Perioden. Die Funktion oszilliert (rot) mit der Mittenfrequenz ω_0 .

³ $\tau_{P0} = \tau_{E0}/\sqrt{2}$

3.3. Nichtlineare Autokorrelation von optischen Laserfeldern

Die Nichtlinearität ermöglicht die Auflösung der tatsächlichen (unter Umständen verbreiterten) Pulsdauer. Eine technische Umsetzung der nichtlinearen Autokorrelation entspricht bis auf die zusätzliche Verwendung eines nichtlinearen Mediums dem prinzipiellen Aufbau eines linearen Autokorrelators, siehe Abbildung 3.4.

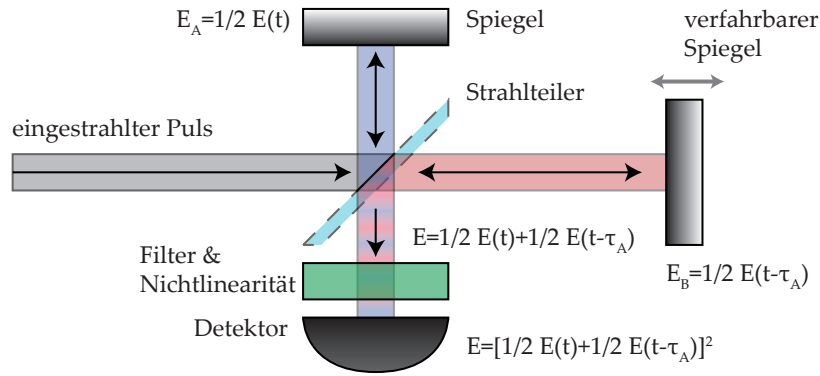


Abb. 3.4.: **Prinzipskizze eines interferometrischen Autokorrelators 2.Ordnung:** Dieser nichtlineare Autokorrelator basiert auf dem Prinzip des Michelson-Interferometers. Der einkommende Puls wird über einen Strahlteiler in zwei Replika (hier **dunkelblau** und **rot**) zerlegt und im Interferometer zeitlich zueinander verzögert. Der Unterschied zum linearen Autokorrelator ist die Verwendung eines nichtlinearen Mediums. Der Detektor registriert nach Möglichkeit nur das nichtlineare Signal.

In Analogie zur linearen Feldkorrelation ist das am Detektor aufgenommene nichtlineare Signal für einen nichtlinearen Prozess 2.Ordnung nach Gleichung B.9 und Gleichung B.10:

$$\begin{aligned}
 \mathfrak{S}_2(\tau_A) &\propto \int_{-\infty}^{\infty} dt \, \mathfrak{s}_2(\tau_A, t) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \, |\mathbf{E}_A + \mathbf{E}_B|^4 \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[\underbrace{\{|\mathbf{E}_A|^2\}^2 + \{|\mathbf{E}_B|^2\}^2}_{\text{Offset}} \right. \\
 &\quad + \underbrace{2|\mathbf{E}_A|^2|\mathbf{E}_B|^2}_{\text{Term 1 bzw. AC}_1} + \underbrace{4\Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\}^2}_{\text{Term 2 bzw. AC}_2} \\
 &\quad \left. + \underbrace{4|\mathbf{E}_A|^2\Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\}}_{\text{Term 3 bzw. AC}_3} + \underbrace{4|\mathbf{E}_B|^2\Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\}}_{\text{Term 4 bzw. AC}_4} \right]
 \end{aligned} \tag{3.17}$$

Dabei ist $\mathfrak{s}_2(\tau_A, t)$ das nichtlineare momentane Signal, dass dem linearen momentanen Signal in zweiter Potenz $\mathfrak{s}_2(\tau_A, t) = [\mathfrak{s}_1(\tau_A, t)]^2 \propto |\sum_i \mathbf{E}_i(t_i)|^4$ entspricht. Für die einzelnen Teilfelder wurden die Ersetzungen $\mathbf{E}_A := \mathbf{E}(t)$ und $\mathbf{E}_B := \mathbf{E}(t - \tau_A)$ vorgenommen. Wie auch für den Fall der linearen Autokorrelation bilden die Terme der nichtlinearen Auto-

korrelation ohne Abhängigkeit vom zeitlichen Versatz⁴ τ_A einen konstanten Offset. Die übrigen Mischterme (Term 1 bis Term 4) beinhalten die Information über die Pulsdauer.

Auflösungsgrenze der nichtlinearen Autokorrelation

Im Vergleich zur linearen Feldkorrelation existieren innerhalb der Autokorrelationsspur Anteile mit doppelter Frequenz, bei dessen Erzeugung eine feste Phasenbeziehung zwischen den zwei Replika der Feldverteilung notwendig ist. Diese notwendige Phasenbeziehung *ermöglicht* innerhalb der nichtlinearen Autokorrelation die *Unterscheidbarkeit von Pulsen verschiedener Pulsdauern* [48]. Die Pulsdauer wird dabei durch die Einhüllende der Autokorrelationsfunktion bestimmt.

3.4. Nichtlineare Autokorrelation von Attosekundenpulszügen

Für ein besseres Verständnis der nichtlinearen Autokorrelation erfolgt nun eine Verallgemeinerung auf den Fall, dass beide Felder nicht identisch sind, eine breite spektrale Verteilung vorliegt und das Interaktionsgebiet räumlich ausgedehnt ist.

Verschiedene Felder

Wurde bisher angenommen, dass beide Replika bis auf den zeitlichen Versatz identisch sind, so lässt sich experimentell die Separation des Feldes nicht exakt in zwei Replika durchführen. Das Feld kann z.B. mithilfe eines geschlitzten Spiegels separiert werden, sodass zugleich der zeitliche Versatz zwischen den einzelnen Spiegelhälften ermöglicht werden kann.

Die Trennung erfolgt demzufolge durch die Apertur bzw. Pupille des Spiegels, Abbildung 3.5, die mit einem Trennbalken in der Mitte, den propagierenden Strahl örtlich in zwei Teile zerlegt - in den Teil von Pupille A und Pupille B. Dabei seien die Beschaffenheiten der einzelnen Pupillen durch die Pupillenfunktion $P_{A/B}(\mathbf{r})$ beschrieben. Das in \mathbf{E}_A und \mathbf{E}_B zerlegte Feld hat die Gestalt:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_A(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)P_A(\mathbf{r}) \\ \mathbf{E}_B(\mathbf{r}, t - \tau_A) &= \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - \tau_A)P_B(\mathbf{r})\end{aligned}\tag{3.18}$$

In der Pupille B wird dabei ein zeitlicher Versatz dem Feld aufgeprägt.

⁴Für den Term $\{|\mathbf{E}_B|^2\}^2$ lässt sich über der Integration eine invariante Variablentransformation der Form $x \rightarrow \tilde{x}$ durchführen.

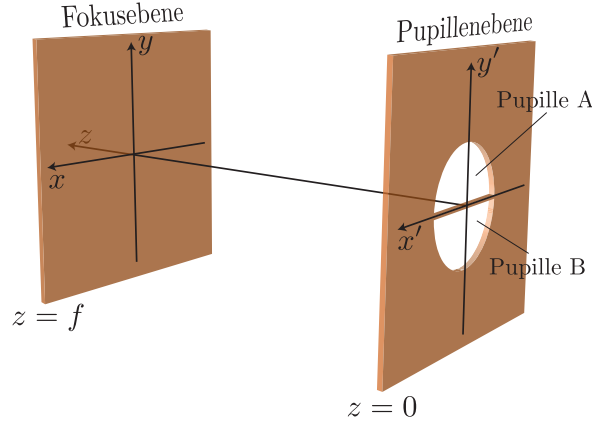


Abb. 3.5.: **Darstellung der Pupillenebene zur Fokusebene:** Der Puls wird in der Pupillenebene separiert und erfährt dort einen zeitlichen Versatz. In der Fokusebene überlappen beide Teile des Feldes wieder miteinander und wechselwirken im nichtlinearen Prozess.

Frequenzkamm

Für eine realistische Betrachtung muss das Feld einer (quasi-) monochromatischen Welle durch einen Frequenzkamm $\sum_n \omega_n$ mit den einzelnen diskreten Frequenzen ω_n , der Amplituden $\mathbf{A}_n(\mathbf{r}, \omega_n)$ und den Phasen $\exp(i\varphi_n)$ ersetzt werden. Da die Spiegeleigenschaften, wie die Reflektivität von der Frequenz abhängen, muss die Pupillenfunktion frequenzabhängig $P_{A/B}(\mathbf{r}, \omega_n)$ betrachtet werden. Die Feldverteilung hat nun die Gestalt [48]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_A(\mathbf{r}_\perp, z, t) = & \sum_{n=n_{\min}}^{n_{\max}} \mathbf{A}_n(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_n) \cdot P_A(\mathbf{r}_\perp, \omega_n) \\ & \cdot \exp \left\{ -i(\omega_n t - (\mathbf{k}_{n\perp} \mathbf{r}_\perp) - (k_{n\parallel} z)) \right\} \cdot \exp(i\varphi_n) \end{aligned} \quad (3.19)$$

Dabei ist die Propagationsachse mit z und die transversalen Komponenten mit \mathbf{r}_\perp beschrieben. Das Spektrum enthält die Frequenzen $\omega_{n_{\min}}, \dots, \omega_{n_{\max}}$. Für die Wellenvektoren gilt:

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_{n\perp} &= \frac{\omega_n}{cf} \mathbf{r}_\perp \\ k_{n\parallel} &= \frac{\omega_n}{c} \end{aligned} \quad (3.20)$$

Das Feld aus Pupille B ist bis auf die Ersetzung $t \rightarrow t - \tau_A$ dazu analog. Die einzelnen diskreten Frequenzen ω_n lassen sich als höhere Ordnung der Fundamentalfrequenz ω_1 beschreiben:

$$\omega_n = n \cdot \omega_1 \quad (3.21)$$

Nichtlineare Prozess 2.Ordnung & Fokusebene

Im Multiphoton-Prozess 2.Ordnung kommt je ein Photon vom Feld \mathbf{E}_A und vom Feld \mathbf{E}_B . Die kumulierte Photonenenergie ist dabei

$$\hbar\omega_N = \hbar\omega_{n_A} + \hbar\omega_{n_B} \quad \text{mit} \quad n_i \in [n_{\min}, n_{\max}] \quad (3.22)$$

mit den Einzelphotonenenergien $E_1 = \hbar\omega_{n_A}$ und $E_2 = \hbar\omega_{n_B}$ und der kumulierten Ordnung bzw. Mode $N = n_A + n_B$ mit $N \in [2n_{\min}, \dots, 2n_{\max}]$. Sei $\bar{\mathbf{s}}_1(\mathbf{r}_\perp, z, \tau_A, \omega_n)$ die Fourier-Transformierte des momentanen Signals $\mathbf{s}_1(\mathbf{r}_\perp, z, \tau_A, t)$, dann lässt sich das nichtlineare Signal $\bar{\mathbf{S}}_2(\tau_A)$ bei Verwendung des Parseval-Theorems (Gleichung A.6) als

$$\begin{aligned} \bar{\mathbf{S}}_2(z, \tau_A) &\propto \sum_N \int d^2\mathbf{r}_\perp [\mathbf{s}_1(\mathbf{r}_\perp, z, \tau_A, t)]^2 = \sum_N \int d^2\mathbf{r}_\perp [\bar{\mathbf{s}}_1(\mathbf{r}_\perp, z, \tau_A, \omega_n)]^2 \\ &= \sum_N \int d^2\mathbf{r}_\perp \left[\underbrace{|\mathcal{I}_{AA}(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, 0)|^2 + |\mathcal{I}_{BB}(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, 0)|^2}_{\text{Offset}} + \underbrace{4|\mathcal{I}_{AB}(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, \tau_A)|^2}_{\text{Pulseinhüllende}} \right. \\ &\quad + \underbrace{2\Re\{\mathcal{I}_{AA}^*(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, 0)\mathcal{I}_{BB}(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, 0)\exp(-i\omega_N\tau_A)\}}_{\omega_N \text{ Interferenzmuster}} \\ &\quad + \underbrace{4\Re\{\mathcal{I}_{AA}^*(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, 0)\mathcal{I}_{AB}(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, \tau_A)\exp(i\omega_{N/2}\tau_A)\}}_{\omega_{N/2} \text{ Interferenzmuster}} \\ &\quad \left. + \underbrace{4\Re\{\mathcal{I}_{BB}^*(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, 0)\mathcal{I}_{AB}(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, \tau_A)\exp(-i\omega_{N/2}\tau_A)\}}_{\omega_{N/2} \text{ Interferenzmuster}} \right] \end{aligned} \quad (3.23)$$

darstellen. Das Signal ist dabei eine Summe über alle 2-Photonen-Moden N und eine Integration über die Fokusebene in \mathbf{r}_\perp . Dabei sind die einzelnen Fourier-transformierten Autokorrelationskomponenten \mathcal{I}_{AB} unter Verwendung der Feldverteilung nach Gleichung 3.19 und einer zusätzlichen Multiplikation mit dem Phasenterm $\exp(-i\omega_{N/2}\tau_A)$ [48]:

$$\begin{aligned} \mathcal{I}_{AB} &:= \mathcal{I}_{AB}(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_N, \tau_A) \equiv \exp(-i\omega_{N/2}\tau_A) \\ &\quad \cdot \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt \mathbf{E}_A^*(\mathbf{r}_\perp, z, t) \mathbf{E}_B(\mathbf{r}_\perp, z, t - \tau_A) \exp(i\omega_N t) \\ &\propto \exp(-i\omega_{N/2}\tau_A) \sum_{n'} \mathbf{A}_{n'}(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_{n'}) \cdot \mathbf{A}_{N-n'}(\mathbf{r}_\perp, z, \omega_{N-n'}) \\ &\quad \cdot \exp\left\{-i(\varphi_{n'} - \varphi_{N-n'})\right\} \exp(i\omega_{N-n'}\tau_A) \\ &\quad \cdot \exp\left\{+i(\mathbf{k}_{n'_\perp} - \mathbf{k}_{N-n'_\perp})\mathbf{r}_\perp + i(k_{n'_\perp} - k_{N-n'_\perp})z\right\} \\ &\quad \cdot P_A(\mathbf{r}_\perp, \omega_{n'}) P_B(\mathbf{r}_\perp, \omega_{N-n'}) \end{aligned} \quad (3.24)$$

mit der Summation über die Permutation $n' \in [n_{\min}, \dots, n_{\max}]$. Mit dieser Gleichung lässt sich nun die nichtlineare Autokorrelation bei bekannten optischen Eigenschaften des ge-

teilten Spiegels, wie Reflektivität, spektrale Bandbreite, Apertur und Brennweite, sowie der Strahlung mit einem gegebenen Spektrum simulieren.

Für Gasharmonische ist diese recht aufwendige Simulation des nichtlinearen Signals bereits durchgeführt worden [48]. Speziell wurde für eine kumulierte Photonenordnungen bzw. Mode, hier $N = 28$, der Einfluss der beteiligten Harmonischen auf die räumliche Modenverteilung des Gesamtsignals $\overline{\mathfrak{S}}_2(z, \tau_A)$ untersucht. Sie ist als grafische Interpretation in Abbildung 3.6 dargestellt. Aufgrund der unterschiedlichen Wellenlängen der

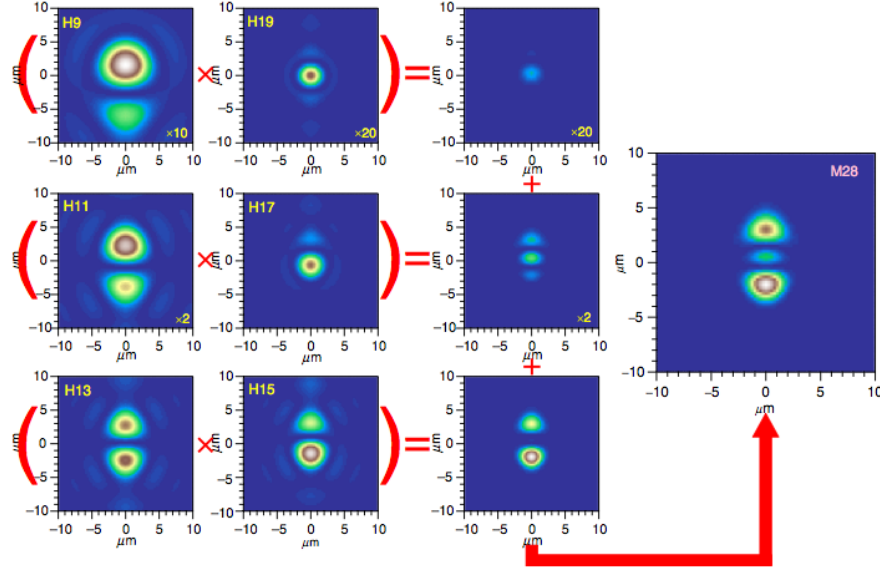


Abb. 3.6.: Simulation der Doppelionisation für die Mode $N = 28$: Die räumliche Modenverteilung von $N = 28$ wird von allen Harmonischen beeinflusst, deren summierte Photonenenergie in der Mode $N = 28$ liegen. In diesem Beispiel existieren drei Kanäle, die zu $N = 28$ führen. Kanal eins mit der 9. und 19. Harmonischen. Kanal zwei mit der 11. und 17. Harmonischen und Kanal drei mit der 13. und 15. Harmonischen. Aufgrund der unterschiedlichen Wellenlängen der einzelnen Harmonischen, zeigen ihre jeweiligen Intensitätsverteilungen in der Fokusebene unterschiedliche Phasenbeziehungen. Das nichtlineare räumliche Signal ist somit eine komplizierte Überlagerung aller beteiligten Harmonischen. Grafik ist [48] entnommen.

einzelnen Harmonischen, zeigen ihre jeweiligen Intensitätsverteilungen in der Fokusebene unterschiedliche Interferenzstrukturen. Das nichtlineare räumliche Signal der 2-Photonen-Mode $N = 28$ ist somit eine komplizierte Überlagerung aller beteiligten Harmonischen. Die Simulation der nichtlinearen Autokorrelationsspur zeigt (Abbildung 3.7) für die Moden 28, 30 bis 38, dass trotz der komplizierten Intensitätsverteilung eine nichtlineare Autokorrelation mit Attosekundenpulszug möglich ist.

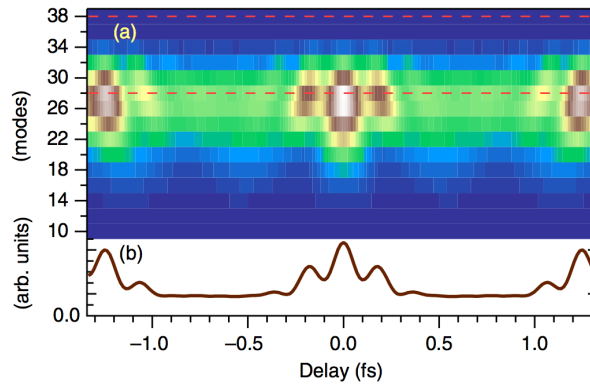


Abb. 3.7.: **Simulation der nichtlinearen Autokorrelationsspur von Attosekundenpulsen:** Das interferometrische Spektrogramm eines Fourier-limitierten Pulszuges ist für die einzelnen Moden von 10 bis 38 in (a) dargestellt. Das Autokorrelationssignal des Pulszuges ist als Überlagerung der Moden 28, 30 bis 38 in (b) dargestellt. Die Grafik ist Ref. [48] entnommen.

3.5. Prozess der nichtlinearen Ionisation mit XUV-Pulsen

Der angestrebte Ionisationsprozess erfolgt im Multiphotonen-Bild durch die Absorption genügend vieler Photonen bis zum Erreichen der Ionisationsenergie. Für eine Autokorrelation 2.Ordnung wird eine nichtlineare Ionisation und deshalb ein 2-Photonenprozess benötigt. Die relevanten Photonenenergien der ROM-Harmonischen liegen im Bereich von $21 \text{ eV} \geq \varepsilon_{\text{ph}} \geq 50 \text{ eV}$. Die Ionisationsenergien der verwendeten Atome bzw. Moleküle müssen deshalb $\varepsilon_{\text{I}} > 50 \text{ eV}$ sein. Einige davon sind in Tabelle 3.1 zusammengetragen.

Element	$()^{0+} \rightarrow ()^{1+} [\text{eV}]$	$()^{1+} \rightarrow ()^{2+} [\text{eV}]$	$\rightarrow ()^{3+} [\text{eV}]$	$\rightarrow ()^{4+} [\text{eV}]$	$\rightarrow ()^{5+} [\text{eV}]$
H	13,6	—	—	—	—
He	24,6	54,4	—	—	—
N	14,5	29,6	47,4	77,5	97,9
O	13,6	35,1	54,9	77,4	113,9
Ne	21,6	41	63,5	97,1	126,2
Ar	15,6	27,6	40,7	59,8	75
Kr	14	24,4	37	52,5	64,7
Xe	12,1	21,2	31	42,2	54,4

Tab. 3.1.: **Ionisationspotential einiger Elemente für die ersten fünf Ladungszuständen:** Für eine nichtlineare Autokorrelation der ROM-Harmonischen, mithilfe eines nichtlinearen Ionisationsprozesses, sind Ionisationspotentiale von $\varepsilon \geq 50 \text{ eV}$ erforderlich. Für die einzelnen Elemente sind die jeweils niedrigsten (möglichen) Übergänge grün markiert. Die Daten wurden aus [50] ermittelt.

Helium-Doppelionisation

Helium bietet mit seinen hohen Bindungsenergien $\varepsilon_{\text{He} \rightarrow \text{He}^+} = 24,59 \text{ eV}$ für das neutrale Atom und $\varepsilon_{\text{He}^+ \rightarrow \text{He}^{2+}} = 54,42 \text{ eV}$ für den ersten ionisierten Zustand [50] die entsprechenden Eigenschaften, siehe Abbildung 3.8.

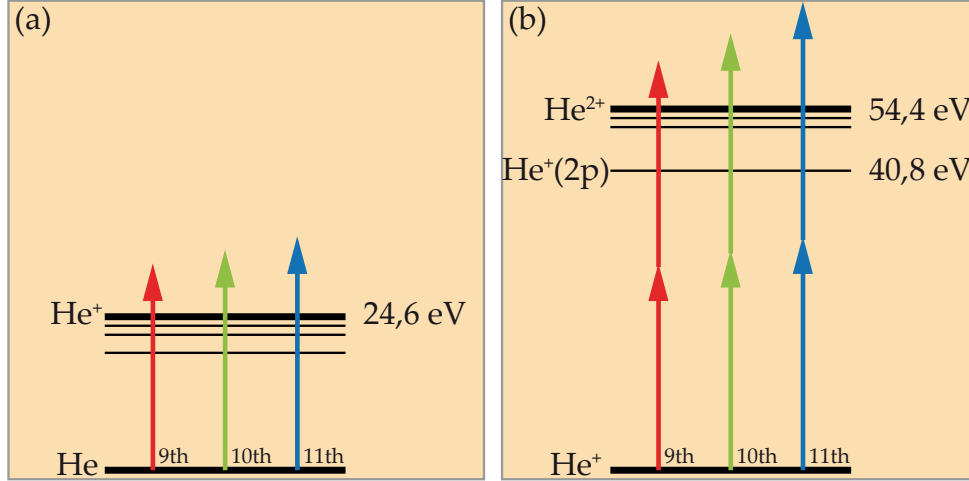


Abb. 3.8.: **Nichtlineare Autokorrelation mithilfe von Helium:** (a) Für Photonenenergien von 20 bis 50 eV erfolgt die Ionisation von He nach He^+ linear durch die Absorption eines Photons. (b) Die Ionisation von $\text{He}^+(1s)$ nach He^{2+} erfolgt nichtlinear durch die Absorption von zwei Photonen. Dieser Übergang soll für die nichtlineare Autokorrelation verwendet werden. Einerseits erfolgt die Ionisation sequentiell mit der Anregung von Zwischenniveaus, wie dem $2p$ -Zustand bei $\varepsilon = 40,8 \text{ eV}$ durch das erste Photon und der anschließenden Absorption des zweiten Photons. Andererseits erfolgt die Ionisation direkt durch die zeitgleiche Absorption der notwendigen Photonen.

Die nichtlineare Autokorrelation mit der 2-Photonenionisation von Helium wurde theoretisch beschrieben [34] und für Gas- [47, 23] und CWE-Harmonische niedriger Ordnung experimentell durchgeführt [51]. Für die ROM-Harmonischen mit ihren höheren Photonenenergien kommt insbesondere die Doppelionisation von Helium in einem Zwei-Photonenprozess in Frage. Sie erfolgt in zwei Schritten:

linear: $\text{He} \rightarrow \text{He}^+$ Der Ionisation des Helium-Atoms vom Grundzustand zum einfach ionisierten (angeregten⁵) Helium, dargestellt in Abbildung 3.8.

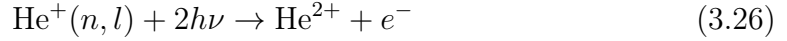
$$\text{He} + h\nu \rightarrow \text{He}^+(n, l) + e^- \quad (3.25)$$

Die Ionisation erfolgt hier wegen den hohen Photonenenergien linear. Das Helium-Ion He^+ stellt das nichtlineare Medium für die Autokorrelation dar.

nichtlinear: $\text{He}^+ \rightarrow \text{He}^{2+}$ Die weitere Ionisation des einfach ionisierten Helium in den

⁵mit den Quantenzahlen n und l .

zweifach geladenen Zustand erfolgt über einen 2-Photonen-Prozess, siehe Abbildung 3.8.



Die Voraussetzung dafür ist, dass sich das Elektron im Grundzustand befindet. Bei der 2-Photonenabsorption ist die relative Phasenlage beider Photonen entscheidend - man spricht von der direkten Ionisation [66]. Bei der indirekten bzw. sequentiellen Ionisation, wird über den Weg der Zwischenanregung das System ionisiert. Hier würde die Phasenbeziehung beider beteiligten Photonen keine Rolle spielen. Die Autokorrelation lässt sich zwangsläufig nur mit dem direkten Prozess umsetzen.

Die gesamte Ionisationswahrscheinlichkeit Ω_{Gesamt} für He^{2+} - erzeugt durch zwei verschobene Pulse mit den Intensitäten I_1 und I_2 und der Gesamtintensität $I = I_1 + I_2$ - liegt inklusive des sequentiellen Anteils bei [34]:

$$\Omega_{\text{Gesamt}} = \underbrace{\sqrt{(\alpha_0 I)(\alpha_1 I)}}_{\text{sequentieller Anteil}} + \underbrace{\sqrt{(1 - \alpha_0 I)(\alpha_2 I^2)} \exp(i(\Delta\varphi + \varphi_0))}_{\text{direkter Anteil}} \quad (3.27)$$

Dabei beschreibt $\alpha_0 I$ den Übergang $\text{He}^+(1s) \rightarrow \text{He}^+(2p)$ und $\alpha_1 I$ den Übergang $\text{He}^+(2p) \rightarrow \text{He}^{2+}$. Der direkte Anteil ($\propto I^2$) ist genau jener, der nicht sequentiell ionisiert wurde ($1 - \alpha_0 I_1$) und mit den 2-Photonen-Prozess ($\alpha_2 I^2$) den Übergang $\text{He}^+(1s) \rightarrow \text{He}^{2+}$ beschreibt. Dabei spielt der Phasenversatz $\exp(i(\Delta\varphi + \varphi_0))$ zwischen beiden Pulsen eine große Rolle [34]. Die Größen α_0 , α_1 und α_2 sind dabei die einzelnen Übergangswahrscheinlichkeiten der Photoabsorption. Für die Photonenenergie von $\varepsilon_{\text{ph}} = 41,85 \text{ eV}$ und einer Intensität von $I = 5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ betragen die Übergangswahrscheinlichkeiten [34]:

$$\begin{aligned} \alpha_0 \alpha_1 &\approx 2,74 \cdot 10^{-32} \text{ cm}^4 / \text{W}^2 \\ \alpha_2 &\approx 8,6 \cdot 10^{-33} \text{ cm}^4 / \text{W}^2 \end{aligned} \quad (3.28)$$

Das bedeutet, dass sowohl die sequentielle als auch die direkte Ionisation ungefähr zu gleichem Anteil am Gesamtsignal von He^{2+} beitragen.

4. Konstruktionskriterien

In diesem Kapitel sollen die technischen Details des Apparates zur zeitlichen Charakterisierung von intensiven Attosekundenpulsen beschrieben werden. Für die Umsetzung einer nichtlinearen Autokorrelation der ROM-Harmonischen muss der optische Aufbau des Apparates die folgenden Aufgaben erfüllen:

1. Fokussierung der XUV-Pulse auf hohe Intensitäten
2. Zeitlicher Versatz der Pulsreplika zur Realisierung einer Autokorrelation
3. XUV-Spektrometer zur Diagnostik der ROM-Harmonischen
4. Selektion der Harmonischen durch spektrale Filterung

Im Folgenden werden diese Aufgaben näher beschrieben und jeweils Lösungsvorschläge präsentiert.

4.1. Fokussierung der XUV-Pulse auf hohe Intensitäten

Zur Fokussierung von XUV-Pulsen müssen speziell angefertigte XUV-Optiken eingesetzt werden. Aufgrund der starken Absorption¹ im XUV Bereich kommen ausschließlich *reflektive* Optiken zum Einsatz. Charakterisiert werden die Spiegel anhand ihrer Rauigkeit, Reflektivität, spektralen Bandbreite und der spektrale Phase bzw. des Chirps. Die Fokussierung der XUV-Pulse auf hohe Intensitäten erfordert Spiegelsysteme hoher Reflektivität. Diese könnten insbesondere durch Reflexion unter schrägem Einfall realisiert werden. XUV-Spiegel mit Metallbeschichtungen besitzen beispielsweise unter flachen Einfall Reflektivitäten im Bereich von $R \geq 80\%$. Neben hoher Reflektivität sind für hohe Intensitäten auch gute Abbildungseigenschaften der einzelnen XUV-Optiken erforderlich, um möglichst beugungsbegrenzte Fokusflächen zu erhalten. Als Spiegelformen können u.a. Ellipsoid-, Toroid-, Parabol- oder sphärische Spiegel zum Einsatz kommen. Speziell für die Gewährleistung kleiner Foki sind Optiken hoher Güte in Form und Beschichtung essentiell.

¹In Luft bzw. in Festkörpern ist nach wenigen μm bzw. nm der komplette Photonenfluss absorbiert.

Welligkeit & Rauigkeit

Bei der Form unterscheidet man besonders in Formtreue und der Oberflächenrauigkeit. Beides sind Größen, anhand derer die Qualität eines optischen Elementes charakterisiert werden kann. Die Oberflächenrauigkeit bzw. -rauheit R_{RMS} wird als RMS^2 -Wert des Höhenprofils $z(x, y)$

$$R_{\text{RMS}} = \sqrt{\frac{1}{M_1 M_2} \sum_{i=1}^{M_1} \sum_{j=1}^{M_2} (z(x_i, y_j) - \langle z \rangle)^2} \quad \text{mit} \quad \langle z \rangle = \frac{1}{M_1 M_2} \sum_{i=1}^{M_1} \sum_{j=1}^{M_2} (z(x_i, y_j)) \quad (4.1)$$

definiert und entspricht den statistischen Schwankung von $z(x, y)$. Dabei ist $\langle z \rangle$ die mittlere Höhe und M_1 bzw. M_2 die Anzahl der Datenpunkte entlang einer Koordinate. Die Oberflächenrauigkeit darf die Wellenlängen der verwendeten Strahlung nicht übersteigen. Das reduziert die Streuung an 'rauen' Oberflächen. Für den XUV-Bereich $\lambda \propto 10 \text{ nm}$ liegen die notwendigen Rauigkeiten daher im Bereich von $< 0,5 \text{ nm}$.

Die Formtreue bzw. die Welligkeit ist ein Maß für die Abweichung der tatsächlich hergestellten Form zur gewünschten. Die Spiegeloberfläche wird dabei durch Zernike-Polynome beschrieben. Das Maximum der Differenz (engl. 'Peak-to-Valley') der Zernike-Polynome von hergestellter und gewünschter Oberfläche definiert die Welligkeit der Optik. Die Welligkeit wird dabei in Einheiten bzw. in Teilen der Wellenlänge $\lambda/(\text{ganze Zahl})$ angegeben. Bei der Herstellung von Optiken wird dazu meist die Testwellenlänge von $\lambda = 633 \text{ nm}$ verwendet. Sphärische Optiken können leicht hergestellt werden und können Welligkeiten im Bereich $\lambda/20$ bis $\lambda/40$ erreichen. Ellipsoid-, Toroid- oder Parabolspiegel lassen sich nur schwer herstellen und besitzen daher häufig Welligkeiten im Bereich von $\lambda/5$ bis $\lambda/10$. Daneben verursachen Toroidspiegel abbildungsbedingt (aufgrund optischer Wegdifferenzen) eine zeitliche Verbreiterung der XUV-Pulse [10]. Damit sind Toroidspiegel eher ungeeignet für die zeitliche Charakterisierung von XUV-Pulsen. Die Intensitätsverteilungen von Toroid-, Ellipsoid sowie sphärischen Spiegeln mit der von Herstellern angegebenen Formtreue wurde mithilfe von der Raytracing-Software (ZEMAX) simuliert. Es hat sich hierbei herausgestellt, dass sich mit vertretbaren finanziellen und technischen Aufwand nur sphärische Spiegel für eine beugungsbegrenzte Fokussierung der XUV Strahlung eignen. Infolgedessen soll ein sphärischer Spiegel mit den erforderlichen Spezifikationen weiter betrachtet werden. Eine ideale Sphäre fokussiert unter senkrechtem Einfall (0° zum Lot) einen XUV-Puls beugungsbegrenzt ab. Bei senkrechtem Einfall besteht allerdings das Problem, dass die Reflektivität für XUV-Strahlung für den Spektralbereich bei Metallspiegeln sehr gering ist ($R \leq 5 \%$).

²engl. 'Root Mean Square'

Multi-Layer-System

Deshalb wurden mit dem Fraunhofer-Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik (IOF, Jena) Multi-Layer-Coatings entwickelt, die innerhalb des Spektralbereiches hochreflektiv sind und die reflektive Metallschicht ersetzen sollen. Ein Multi-Layer-Coating (kurz Multi-Layer) ist ein Schichtsystem alternierender Materialien, der wiederholt zusammengesetzt ein Viellagensystem ergibt. Die kleinste Doppelschicht (Bi-Layer) wird Periode genannt. Sie besitzt die Dicke d und wiederholt sich mit der Periodenanzahl N . Multi-Layer-Schichtsysteme basieren auf der konstruktiven Interferenz der Partialwellen

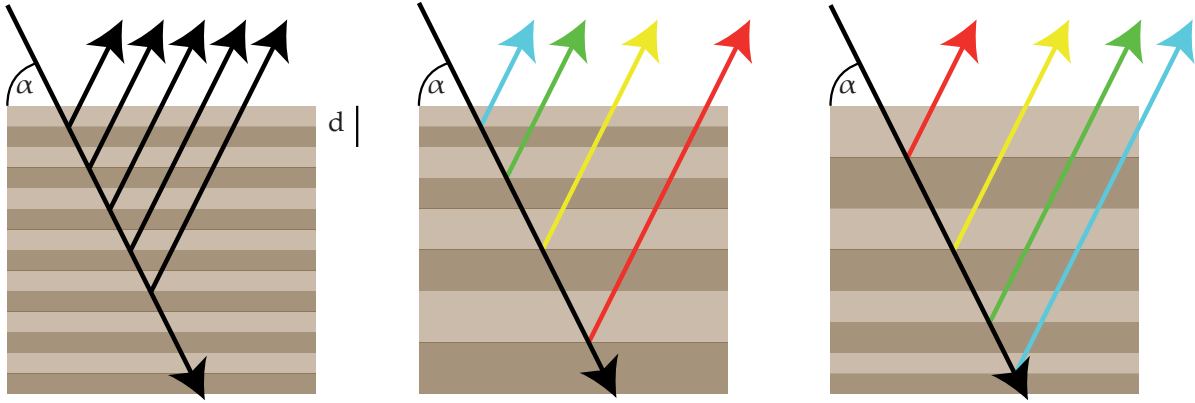


Abb. 4.1.: Prinzipskizze von Multi-Layer-Schichtsystemen: (Links) Für ein Schichtsystem mit konstanter Periode, also gleichbleibender Schichtdicke, erfolgt die partielle Reflexion eines einfallenden Pulses an jeder Periode gleich. D.h. alle Frequenzanteile des Pulses werden in Abhängigkeit der Bragg-Bedingung über das gesamte Schichtsystem hinweg reflektiert. Für eine konstante Periode erfüllt genau eine Frequenz die Bragg-Bedingung. Das reflektierte Fernfeld ist die Summe der konstruktiv überlagerten Partialwellen. (Mitte) Für ein Schichtsystem mit variierenden Schichtdicken, ist die Bragg-Bedingung für jede Periode eine andere. D.h. es werden in unterschiedlichen Perioden und damit Multi-Layer-Schichttiefen verschiedene Frequenzanteile reflektiert. Hier für zunehmende Schichtdicken in Richtung des einfallenden Pulses, reflektieren die hochfrequenten Anteile im oberen Bereich und die niederfrequenten Anteile im unteren Bereich. Diese ortsabhängige Reflexion verursacht ein Chirp für das reflektierte Feld. (Rechts) Sind die Schichtdicken genau entgegengesetzt angeordnet, erfolgt die Reflexion der niederfrequenten Anteile im oberen und die der hochfrequenten Anteile im unteren Bereich. Der Puls ist in diesem Fall entgegengesetzt gecirpt.

an den einzelnen Perioden, siehe Abbildung 4.1. Die konstruktive Interferenz wird durch die Bragg-Bedingung

$$m\lambda = 2d \sin \alpha \sqrt{1 - \frac{2\bar{\delta}}{\sin^2 \alpha}} \quad (4.2)$$

beschrieben [67]. Hierbei ist $\bar{\delta} = \sum_k \delta_k d_k / d$ der mittlere Brechungsindex der Periode, berechnet aus den Brechungsindizes der beteiligten Materialien δ_k und der Periodendicke d_k . Durch die Anpassung an eine bestimmte Periodendicke wird die Reflexion einer spezi-

ellen Wellenlänge begünstigt. Da die Bragg-Bedingung neben der Schichtdicke auch vom Einfallswinkel α abhängt, kann durch Anpassung des Schichtsystems die Reflektivität für einen festen aber beliebigen Einfallswinkel optimiert werden. Beispielsweise beträgt die Schichtdicke d bei senkrechtem Einfall und Photonenenergien von $\varepsilon_{\text{ph}} = 34 \text{ eV}$ rund 18 nm. Durch zunehmende Periodenanzahlen kann zudem die Gesamtreflektivität des Multi-Layers - wegen vermehrter konstruktiver Interferenz - erhöht werden.

Zur Realisierung von Breitband-XUV-Spiegeln kommen deshalb Multi-Layer mit variierenden Schichtdicken zum Einsatz, sogenannte Breitband-Multilayer-Schichtsysteme. Aufgrund ihrer unterschiedlichen Periodendicke werden dabei in unterschiedlichen Perioden bzw. Schichttiefen des Multi-Layers verschiedene Spektralbereiche reflektiert. Die Variation der Schichtdicken erlaubt somit die Anpassung der spektralen Reflektivität. Dies geht allerdings bei großen reflektierten Bandbreiten zu Lasten der maximalen Reflektivität. Wegen der Reflexion einzelner Frequenzanteile in verschiedenen Schichttiefen weist die reflektierte spektrale Phase zwangsläufig einen Chirp auf. Dieser verursacht eine Verbreiterung der Pulsdauer des eingestrahnten XUV-Pulses (Gleichung 2.12). Breitband-XUV-Multi-Layer stellen im Allgemeinen große Herausforderungen an die Beschichtungstechnologie.

Spezifikationen des verwendeten sphärischen Spiegels

Für die Reflexion der ROM-Harmonischen unter senkrechtem Einfall im Bereich von 25...40 eV wurde ein sphärischer Spiegel hergestellt, dessen reflektive Schicht aus einem breitbandigen Multi-Layer-Schichtsystem besteht. Das Spiegelsubstrat wurde dabei von Layertec in Mellingen gefertigt und das Schichtsystem stammt vom Fraunhofer IOF in Jena. Das hergestellte Breitband-Multi-Layer-Schichtsystem wurde möglichst für eine glatte spektrale Phase und gleichzeitig für eine hohe Gesamtreflektivität optimiert und realisiert. Der sphärische Spiegel besitzt die folgenden Eigenschaften:

Eigenschaft	Wert
Durchmesser	50 mm
Einfallswinkel (zum Lot)	0°
Brennweite	250 mm
Welligkeit ^a	$\lambda/20$
Rauheit	< 0,2 nm
Multi-Layer-Material	Sc-Si
Bandbreite in [nm]	30...50 nm
Bandbreite in [eV]	24,8...41,3 eV
Reflektivität in [30...50 nm]	> 10 %

^aDer Parameter λ bezieht sich stets auf 633 nm.

Tab. 4.1.: Die Eigenschaften des sphärischen Spiegels unter senkrechtem Einfall.

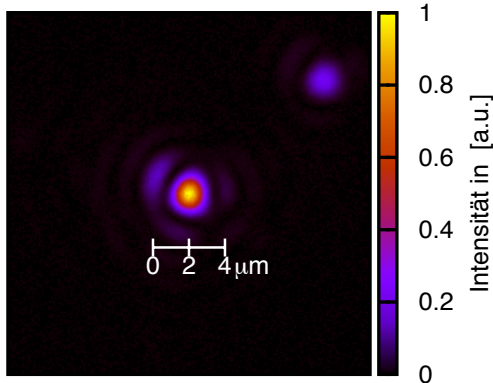


Abb. 4.2: **Intensitätsverteilung** des 800 nm-Pulses in der Fokalebene des sphärischen XUV-Spiegels : Die Fokusfläche des sphärischen XUV-Spiegels beträgt für den 800 nm-Puls rund $A \approx 2,8 \mu\text{m}^2$. Der Fokus wurde mit einem dünnen Strahlteiler unter dem Einfallswinkel von 45° auf eine CCD-Kamera abgebildet. Die Reflexion an der Rückseite des Strahlteilers verursacht den zweiten Fokus in der oberen rechten Ecke.

Die Intensitätsverteilung des 800 nm-Pulses in der Fokalebene der Sphäre ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Die Fokusfläche beträgt ca. $A \approx 2,8 \mu\text{m}^2$ und ist damit beugungsbegrenzt.

Einfluss des Multi-Layers auf die spektrale Phase

Wie bereits erwähnt verursacht die Reflexion verschiedener Frequenzanteile in verschiedenen Multi-Layer-Schichten eine Manipulation der spektralen Phase. Den Pulsen wird ein Chirp aufgeprägt [10], der die Pulsdauer des XUV-Pulses verändert [33]. Das hergestellte Sc-Si-Schichtsystem besitzt, die in der folgenden Abbildung 4.3, reflektierte spektrale Phase und spektrale Reflektivität³:

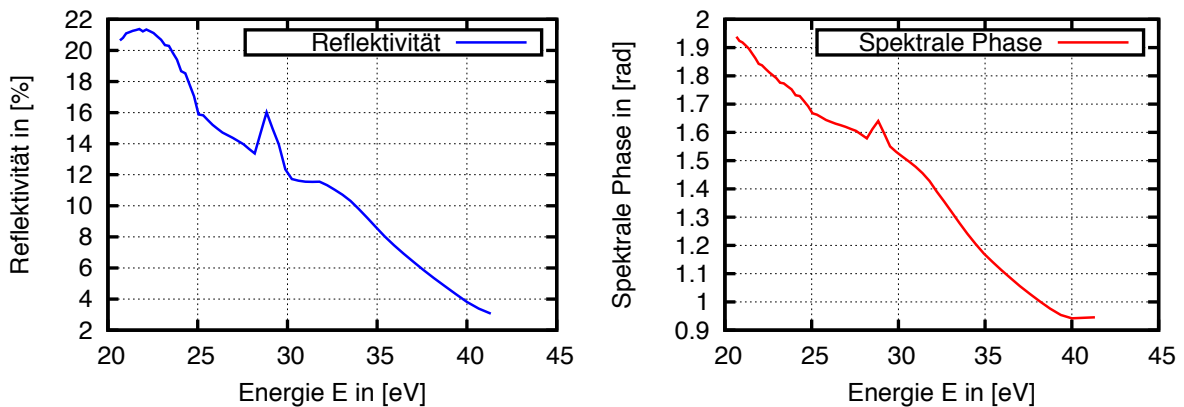


Abb. 4.3.: **Reflektivität und Spektrale Phase des Multi-Layers für die Energien von 30 bis 45 eV:** (Links) Die Reflektivität schwankt zwischen 3 % und knapp 21 % und liegt gemittelt bei ca. 10 %. (Rechts) Die Spektrale Phase variiert über der Bandbreite von 0,9 bis 2 rad. Die Krümmung des Verlaufes der spektralen Phase bestätigt die Existenz eines Chirps.

³Diese wurde in einem mehrstufigen Messverfahren an der PTB Beamline am BESSY Synchrotron charakterisiert.

Das Anfiten eines Taylor-Polynoms an den Verlauf der spektralen Phase ermöglicht die Zerlegung der spektralen Phase nach Gleichung 2.8 in CEP, GD und GDD. Die GDD ist bei der Energie $\varepsilon_{\text{ph}} = 34 \text{ eV}$:

$$\text{GDD}_{\text{ML}} \approx -5311 \text{ as}^2 \quad (4.3)$$

Bei einer simulierten Attosekundenpulsdauer der ROM-Harmonischen von $\tau = 100 \text{ as}$ für die im Experiment verwendeten Parameter [6, 74] verbreitert sich die Pulsdauer infolge der GDD (Gleichung 2.12) auf

$$\tau_{\text{GDD}} \approx 178 \text{ as.} \quad (4.4)$$

Zusammen mit der simulierten Fokusverteilung des XUV-Fokus und der Pulsenergie der ROM-Harmonischen (Abschnitt B) lässt sich die Spitzenintensität der ROM-Harmonischen (Gleichung B.15) in der Fokalebene des sphärischen Spiegels zu

$$I_{\text{ROM}} \approx 1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2 \quad (4.5)$$

abschätzen.

4.2. Zeitlicher Versatz der Pulsreplika zur Realisierung einer Autokorrelation

Die Realisierung eines zeitlichen Versatzes (auch Delay genannt) ist die Grundvoraussetzung für eine Umsetzung der Autokorrelationsmethode. Da für den XUV-Bereich zwischen 20 und 50 eV breitbandige Strahlteiler technisch kaum realisierbar sind, ist die einfachste technische Realisierung ein *zwei-geteilter* sphärischer Spiegel, siehe Abbildung 4.4. Der Spiegel wurde dazu mittig geteilt. Der geteilte sphärische Spiegel vereint somit die Funktion des Strahlteilers (die Zerlegung des XUV-Pulses in zwei Pulsreplika) und kann den zeitlichen Versatz realisieren.

Das Delay kann durch die Translation einer Spiegelhälfte umgesetzt werden. Dies wurde mit einem Piezo-Aktuator realisiert, der unter der ersten Spiegelhälfte montiert ist. Der dazu verwendete Aktuator PZ100 CAP (piezosystem Jena) besitzt eine relative Positioniergenauigkeit (Auflösung) von 1 nm [70] bzw. 3,3 as und einen Gesamtverfahrweg von 80 μm bzw. 265 fs. Der Aktuator muss dabei mit einem kapazitiven Sensor stabilisiert werden. Aufgrund des verdoppelten optischen Weges bei Verwendung eines sphärischen Spiegels unter senkrechtem Einfall beträgt die Positioniergenauigkeit bzw. die maximale Gesamtverfahrzeit - bezogen auf den Versatz der Pulsreplika - 6,6 as bzw. 530 fs.

Durch die Zerlegung des sphärischen Spiegels in zwei Hälften entstehen zwei Foki (Abbildung 5.9), die zwangsläufig nicht übereinander liegen. Für die Gewährleistung des räumli-

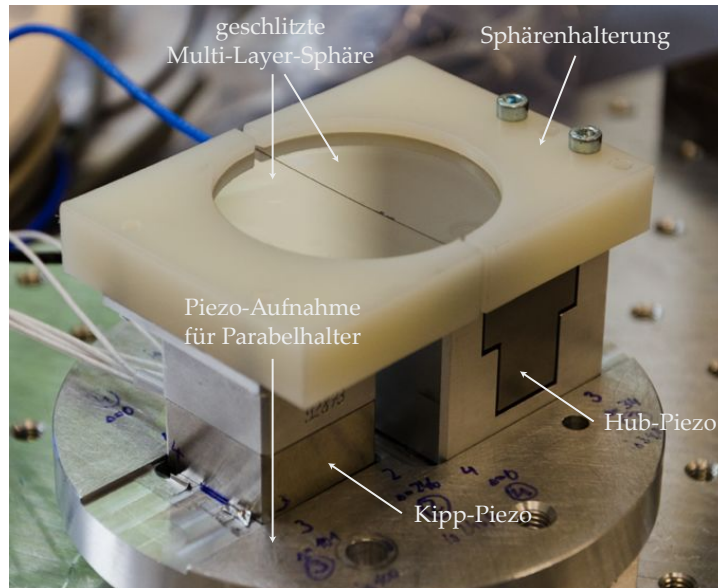


Abb. 4.4.: Blick auf den zwei-geteilten sphärischen Spiegel: Die zerteilte Sphäre wird durch einen Kunststoffrahmen mit den Piezo-Elementen verschraubt. Die Piezoversteller sind ihrerseits mit der Adapterplatte für einen 4"-Targethalter verbunden und durch unterschiedlich tiefe Fräsungen in der Höhe korrigiert. Der Kipp-Piezo erreicht eine Verkippung von 1 mrad und der Hub-Piezo besitzt einen Verfahrweg von $80\text{ }\mu\text{m}$ sowie eine Schrittgenauigkeit von 1 nm.

chen Überlapps wurde deshalb die zweite Spiegelhälfte mit einer Verkippen-Einheit PSH 1z (piezosystem Jena) ausgerüstet und entsprechend justiert. Dieser Kipp-Piezo-Aktuator kann zwischen Unter- und Oberkante des Aktuators einen maximalen Kippwinkel von 1 mrad realisieren.

Durch die Verwendung dieser zwei Piezo-Aktuatoren kann der XUV-Puls in zwei Replika zerlegt und zeitlich zueinander verzögert werden, so dass eine Autokorrelation mit diesem Aufbau durchgeführt werden kann.

4.3. Selektion der Harmonischen durch spektrale Filterung

Die ROM-Harmonischen, die CWE-Harmonischen und der fundamentale Laserpuls besitzen unterschiedliche Pulsdauern und Spektralbereiche. Für eine zeitliche Vermessung der ROM-Harmonischen müssen die relevanten ROM-Harmonischen von der Fundamentalstrahlung und den CWE-Harmonischen getrennt werden. Für die Umsetzung können die folgenden spektral filternden Techniken verwendet werden:

- Metallspiegel im Brewster-Winkel
- Multi-Layer-Schichtsysteme mit angepasster Periodendicke

- Metallfolien als Transmissionsfilter
- Niederdichte Plasmatargets für Absenkung der CWE-Cut-Off-Energie

Die Filterung durch Metallspiegel beruht auf der Frequenzabhängigkeit des Brewsterwinkels. Die p-polarisierte Fundamentalstrahlung lässt sich beispielsweise dadurch herausfiltern, indem ein Metallspiegel im Brewster-Winkel der Fundamentalen verwendet wird [77]. Für einen Siliziumspiegel z.B. beträgt die Extinktion der Fundamental ca. $3 \cdot 10^{-1}$ [56] pro verwendetem Siliziumspiegel. Der Nachteil solcher zusätzlichen Spiegel liegt im Mehraufwand der Justage und in der fehlenden spektralen Filterung innerhalb des XUV-Bereiches für eine Separation der ROM-Harmonischen von den CWE-Harmonischen. Aus diesen Gründen soll diese Methode nicht angewendet werden.

Breitband-Multi-Layer-Schichtsysteme eignen sich hervorragend für die Reflexion selbst festgelegter spektraler Bandbreiten, wie es bereits in Abschnitt 4.1 beschrieben wurde.

Die Verwendung dünner (nm... μ m) metallischer Folien (z.B. Aluminium, Magnesium, Beryllium oder Silizium) als Transmissionsfilter besitzen gegenüber einfachen Metallspiegeln und Multi-Layer-Systemen entscheidende Vorteile. Zum ersten sind die Folien bereits für sichtbares Licht und damit für die Fundamentalstrahlung undurchlässig. Zum zweiten werden nur die Anteile der XUV-Strahlung transmittiert, deren Photonenenergie zwischen den Bindungsenergien der Elektronen im Metall liegen. Das erlaubt eine gezielte Wahl des Folienmaterials um die transmittierte Bandbreite zu manipulieren. Durch unterschiedliche Folienmaterialien mit anderen elektronischen Strukturen lassen sich somit verschiedene Bandbreiten umsetzen. Und zum dritten ist der Justageaufwand des Transmissionsfilters marginal. Ein Transmissionsfilter aus Aluminium, siehe Abbildung 4.5, soll daher eingesetzt werden.

Eine weitere Möglichkeit der spektralen Filterung ist die Verwendung eines niederdichten Plasmatargets. Das Glassubstrat zur Erzeugung der ROM-Harmonischen kann dabei mit einem Fotolack beschichtet werden. Das reduziert die maximale Elektronendichte für das gezündete Plasma und senkt damit die Cut-Off-Energie der CWE-Harmonischen. In Verbindung mit einem geeigneten Transmissionsfilter können so die ROM-Harmonischen relativ einfach von der störenden Fundamentalstrahlung und den CWE-Harmonischen isoliert werden.

Hier kommt daher ein mit Fotolack beschichtetes Glastarget ($n_e = 200 n_c$) zum Einsatz, dass die Cut-Off-Energie der CWE-Harmonischen auf $\varepsilon_{ph} \approx 21,7$ eV absenkt. Das entspricht der 14-ten Harmonischen bei einer 800 nm-Fundamentalstrahlung. Aluminium besitzt mit einem Transmissionsfenster von $\varepsilon_{fi} \approx 20 \dots 70$ eV, siehe Abbildung 4.5, nahezu ideale Transmissionseigenschaften. Das bedeutet, dass dank der abgesenkten CWE-Cut-Off-Energie im Wesentlichen nur die höherenergetischen ROM-Harmonischen $\varepsilon_{ph} > 22$ eV die Folie passieren. Da der Breitband-Multi-Layer nur bis zu einer Photonenenergie von

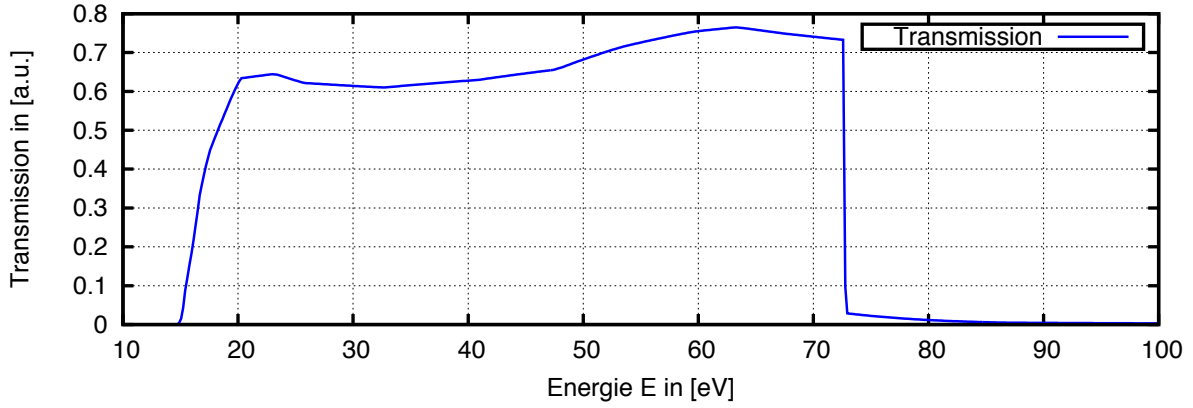


Abb. 4.5.: **Die Transmissionskurve für Aluminium der Dicke von 200 nm in Abhängigkeit der Photonenenergie:** Im Bereich von $\varepsilon_{\text{fi}} \approx 20 \dots 70$ eV beträgt die Transmission zwischen 60 und 80 % - das Transmissionsfenster. Außerhalb dieses Fensters sinkt die Transmission rapide auf 0 %. Die Daten sind [30], [31] entnommen.

ca. $\varepsilon_{\text{ph}} = 40$ eV reflektierend wirkt, genügt die Obergrenze des Transmissionsfensters von 70 eV aus, um die relevanten ROM-Harmonischen zu transmittieren und gleichzeitig die hochenergetische Plasmastrahlung zu filtern. Die verwendeten Aluminiumfilter wurden von der Lebow Company in Goleta, U.S.A. gefertigt und besitzen eine Dicke von 200 nm. Die Transmission liegt innerhalb des Transmissionsfensters bei knapp 60 % (Gleichung 2.25).

Einfluss des Transmissionsfilters auf die spektrale Phase

Als unerwünschte Eigenschaft beeinflusst der Aluminiumfilter als dispersives Medium mit dem Brechungsindex $\tilde{n}_{\text{fi}}(\omega)$ [31] allerdings die spektrale Phase (Gleichung 2.6) der XUV-Pulse. In Analogie zur Charakterisierung des breitbandigen Multi-Layer-Schichtsystem lässt sich auch für den Aluminiumfilter die spektrale Phase in ihre einzelnen Terme zerlegen. Die Pulsdauer-beeinflussende GDD (Gleichung 2.12) lässt sich dabei für 200 nm-dickes Aluminium zu

$$\text{GDD}_{\text{Al}} \approx -2373 \text{ as}^2 \quad (4.6)$$

bestimmen. Da es an der Oberfläche des Aluminiumfilters zu Oxidationen kommt, verändern sich die dispersiven Eigenschaften. Untersuchungen ergaben, dass sich der oxidierte Aluminiumfilter wie Al_2O_3 [29] verhält. Für diesen Fall beträgt die GDD:

$$\text{GDD}_{\text{Al}_2\text{O}_3} \approx -1532 \text{ as}^2 \quad (4.7)$$

Die simulierte Pulsdauer der ROM-Harmonischen von $\tau = 100$ as bei Parametern ähnlich dem *JETI*-Laser [6, 74] verbreitert sich in beiden Fällen zu:

$$\tau_{\text{Al}} = 119,7 \text{ as} \quad \text{bzw.} \quad \tau_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 108,6 \text{ as} \quad (4.8)$$

Der durch den Transmissionsfilter verursachte Chirp besitzt nur einen marginalen Einfluss auf die Pulsdauer. Die gesamte Pulsverbreiterung, inkl. der des GDD-optimierten Multi-Layer-Schichtsystems, liegt hingegen bei:

$$\tau_{\text{ML-Al}} = 235,3 \text{ as} \quad \text{bzw.} \quad \tau_{\text{ML-Al}_2\text{O}_3} = 214,5 \text{ as} \quad (4.9)$$

Die Gesamt-GDD beträgt hierfür $\text{GDD}_{\text{ML-Al}} = -8684 \text{ as}^2$ bzw. $\text{GDD}_{\text{ML-Al}_2\text{O}_3} = -6843 \text{ as}^2$. Der Faktor der Pulsdauererweiterung beträgt gemittelt ca. 2,2. Gerade für sehr kurze Fourier-limitierte Pulse mit Pulsdauern von 100 as, ist der Einfluss der GDD auf die Pulsdauer größer als bei längeren Pulsen (Abbildung 2.3). Daher ist davon auszugehen, dass schon etwas längere Fourier-limitierte Pulse bei beispielsweise 200 as eine geringe Pulsdauererweiterung erfahren. Die für die ROM-Harmonischen vorausgesagte Pulsdauer von 100...300 as (bei den experimentellen Bedingungen) stellt demzufolge wesentlich höhere Ansprüche an die Kompensation der Dispersion als die wesentlich längeren CWE-Harmonischen.

4.4. XUV-Spektrometer zur Diagnostik der ROM-Harmonischen

Zur in-situ Untersuchung des XUV-Spektrums während der Autokorrelation kommen ausschließlich Diagnostiken in Frage, die die Ionisationsexperimente unwesentlich behindern. Dazu ist es erforderlich, die auf den sphärischen Spiegel treffende XUV-Strahlung nicht zu blockieren. Glücklicherweise besitzen die ROM-Harmonischen eine maximale Divergenz von 60 mrad [14], bei der noch XUV-Strahlung detektiert werden kann. Die Winkelakzeptanz des sphärischen Spiegels liegt mit 40 mrad deutlich darunter, so dass mit Umlenkspiegeln in dem äußeren Bereich > 40 mrad die Ränder der XUV-Pulse auf ein XUV-Spektrometer gelenkt werden können. Da in diesem äußeren Bereich der Photonenfluss sehr gering ist, werden Umlenkspiegel hoher Reflektivität erforderlich. Der im Experiment verwendete Umlenkwinkel soll außerdem flexibel an die Bedürfnisse angepasst werden und ist daher nicht vorbestimmt. Deshalb sollen monolithische Beschichtungen zum Einsatz kommen.

Coating der Umlenkspiegel

Die Anforderung an die Umlenkspiegel sind zum einen eine hohe Oberflächengüte (hier Welligkeit) $\leq \lambda/20$ und zum anderen eine hohe Reflektivität. Die Oberflächengüte kann mithilfe eines polierten Glassubstrates realisiert werden. Die Reflektivität wird von der darauf aufgetragenen monolithischen Schicht bestimmt. Da sich die Schichtdicken im Bereich von bis zu wenigen μm belaufen und damit die Reflexion an der Oberkante vom Glassubstrat bzw. unterhalb der Beschichtungen keine Rolle spielt, spricht man auch von *dicken* Spiegeln.

Allgemein sind die aufgetragenen Schichten für den XUV-Bereich je nach Bandbreite verschiedene Metalle, Halbmetalle, Legierungen oder Keramiken mit möglichst hohen Dielektrizitätszahlen ϵ_r ⁴. Die Bandbreite wird durch die Absorptionskanten der verwendeten Stoffe bestimmt. Aufgrund des Brechungsindex von $n \approx 1$ im XUV (Gleichung 2.22) sind kleine Einfallswinkel⁵ für gute Reflektivitätsausbeuten notwendig.

Gängige XUV-Beschichtungen bestehen u.a. aus Gold (Au), Platin (Pt) bzw. Borcarbid (B_4C). Ihre Reflektivitäten sind zum gegenseitigen Vergleich einerseits über den Einfallswinkel bei der Photonenenergie $\epsilon_{\text{ph}} = 34\text{ eV}$ und andererseits über der Photonenenergie beim Einfallswinkel $\alpha = 25^\circ$ in Abbildung 4.6 dargestellt.

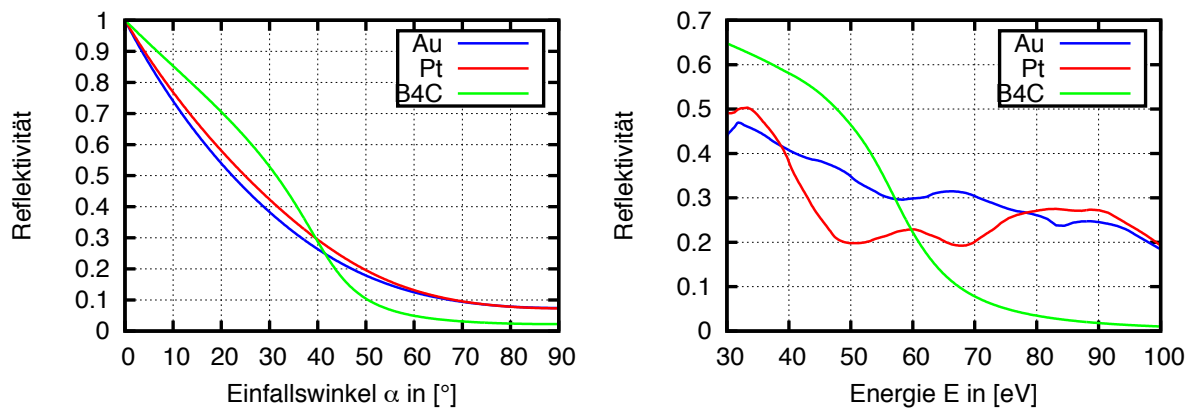


Abb. 4.6.: Winkel- und energieabhängige Reflektivitäten verschiedener Materialien: (Links) Die Reflektivitäten von Au, Pt, und B_4C sind für verschiedene Einfallswinkel bei $\epsilon_{\text{ph}} = 34\text{ eV}$ aufgetragen. Die Reflektivitäten unterscheiden sich in ihrer Stärke um bis zu 10 %. Für alle Reflektivitäten oberhalb von $\alpha \approx 40^\circ$ weist die Borcarbid-Verbindung stets das höchste Reflexionsvermögen auf. (Rechts) In spektraler Betrachtung bei dem Einfallswinkel von $\alpha = 25^\circ$ weist B_4C bis $\epsilon_{\text{ph}} \approx 55\text{ eV}$ ebenso die höchste Reflektivität auf. Zusammengestellt aus den Daten von [30].

Man sieht, dass die B_4C -Verbindung winkel- als auch energieabhängig im Vergleich zu Gold und Platin die höchste Reflektivität für (kleine) Winkel bis $\alpha \approx 40^\circ$ und Photonenenergien bis $\epsilon_{\text{ph}} \approx 55\text{ eV}$ aufweist. Daher soll Borcarbid als Reflexionsschicht für die

⁴die einen hohen Brechzahlhub ermöglichen.

⁵bezogen zur Oberfläche

Umlenkspiegel verwendet werden. Die Analyse sowie die Herstellung der Spiegel erfolgte am Fraunhofer-Institut für Optik und Feinmechanik (IOF) in Jena. Die Eigenschaften der Spiegel sind:

Eigenschaft	Wert
Apertur	$100 \times 30 \text{ mm} \times \text{mm}$
Krümmung	plan
Welligkeit	$\lambda/20$
Rauheit	$< 0,5 \text{ nm}$
reflektive Schicht	B_4C

Tab. 4.2.: Die Eigenschaften der B_4C -Umlenkspiegel.

Von den Umlenkspiegel gelangt die XUV-Strahlung zu einem eigens dafür konstruierten und umgesetzten Flat-Field-Spektrometer, siehe Abbildung 4.7. Mit einem Reflexions-

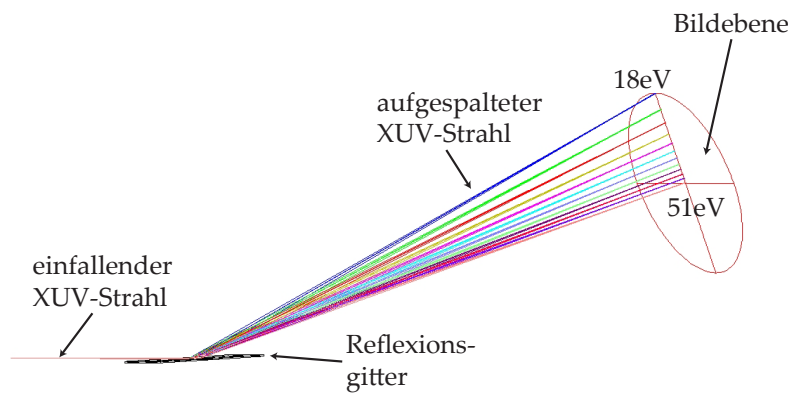


Abb. 4.7.: **3D-Ansicht des mit ZEMAX konstruierten Flat-Field-Spektrometers:** Der einfallende XUV-Strahl wird von einem Reflexionsgitter von Hitachi mit 1200 Linien/mm spektral aufgespalten. Das XUV-Spektrum wird dabei von einer CCD-Kamera (Andor D0940P) in der Bildebene aufgenommen. Das hier dargestellte Spektrum reicht von 18 eV bis 51 eV.

gitter von Hitachi mit 1200 Linien/mm wird die XUV-Strahlung spektral aufgespalten. Das XUV-Spektrum wird von einer CCD-Kamera (Andor D0940P) in der Fokalebene des Reflexionsgitters aufgenommen.

4.5. Apparatur zur nichtlinearen Autokorrelation

Unter Berücksichtigung der oben beschriebenen Teilaufgaben und Konstruktionskriterien wurde die Messapparatur entwickelt. Diese ist in Abbildung 4.8 schematisch dargestellt:

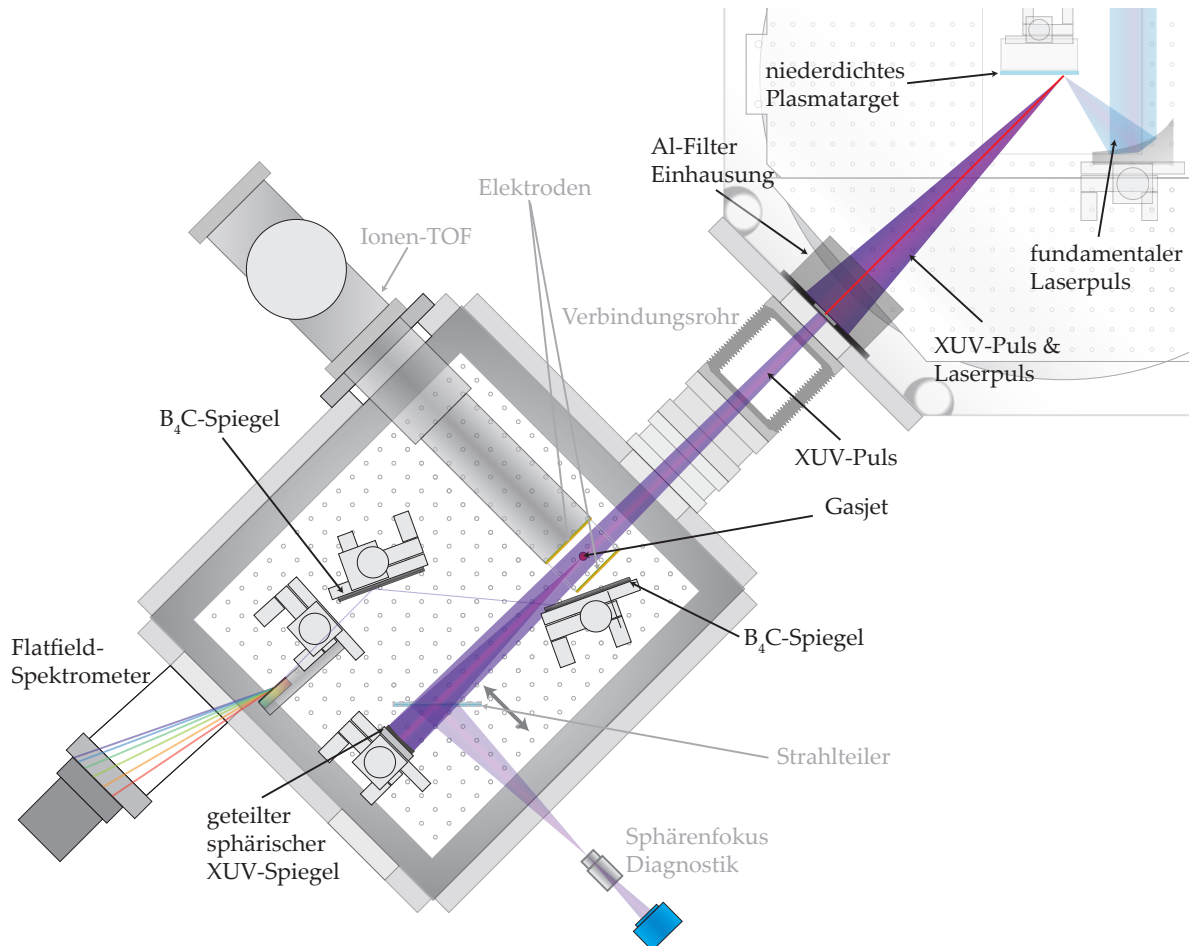


Abb. 4.8.: Entwurf des nichtlinearen Autokorrelators in der Draufsicht: Die XUV-Pulse werden an einem Fotolack-beschichtetes Glasktarget (niederdichtes Plasmatarget) erzeugt. Der Aluminium-Transmissionsfilter (Al-Filter-Einhausung) filtert die XUV-Strahlung $> 21 \text{ eV}$ von dem treibenden Laserpuls. Der divergente XUV-Puls passiert zwischen zwei Elektroden den späteren Bereich der Ionisation. Die genaue Funktionsweise wird im folgenden Abschnitt erklärt. Der geteilte sphärische XUV-Breitband-Spiegel fokussiert die parallel zum Lot einfallenden ROM-Harmonischen mit einer Divergenz von $< 40 \text{ mrad}$ in das Ionisationsgebiet (Gasjet). Die Intensität liegt schätzungsweise bei $I_{\text{ROM}} \approx 1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Die Bereiche mit einer Divergenz von $> 40 \text{ mrad}$ werden mithilfe von zwei Umlenkspiegeln, die mit Borcarbid (B_4C) beschichtet sind, zum XUV-Spektrometer (Flat-Field-Spektrometer) gelenkt. Die Beschreibung der mit grau unterlegten Vorrichtungen erfolgt im nächsten Abschnitt.

5. Experiment

Während der Diplomarbeit wurde ein Aufbau zur nichtlinearen Autokorrelation von intensiven XUV-Pulsen entwickelt, die in einem Experiment am Jenaer Titan-Sapphir Laser (*JETI*) erzeugt wurden. Beim *JETI*-Laser handelt es sich um ein 40 TW Lasersystem mit einer Pulsdauer von 30 fs und einer Pulsenergie von 0,8 J. Die Mitten-Wellenlänge beträgt 795 nm. Das Experiment wurde in drei Schritten durchgeführt:

1. Stabile Erzeugung der ROM-Harmonischen mit hoher Repetitionsrate
2. Fokussierung der Harmonischenstrahlung & Ionisation mit intensiven XUV Pulsen
3. Versuch einer nichtlinearen Autokorrelation mit CWE- und ROM-Harmonischen

In Abbildung 5.1 ist der Experimentierablauf illustriert.

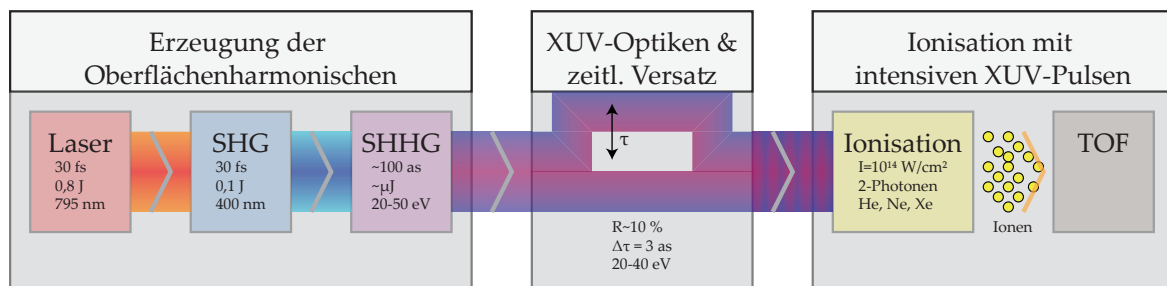


Abb. 5.1.: Piktogramm des Autokorrelation-Experimentes: Zunächst werden die Oberflächenharmonischen mithilfe der zweiten Harmonischen des Lasers stabil erzeugt (Schritt 1). Im Anschluss daran werden die erzeugten Oberflächenharmonischen über XUV-Optiken aufgesammelt, zeitlich versetzt und in ein Gas fokussiert (Schritt 2). Die Ionisationsfragmente (Ionen bzw. Elektronen) werden mit einem Time-of-Flight-Spektrometer registriert.

5.1. Teil-Experiment 1: Stabile Erzeugung der ROM-Harmonischen

Das Teil-Experiment zur Erzeugung der relativistischen Oberflächenharmonischen ist in Abbildung 5.2 schematisch und als Aufnahme in Abbildung 5.3 dargestellt. Mit diesem optischen Aufbau werden zwei Aufgaben erfüllt:

- Erzeugung der zweiten Harmonischen zur Kontrastverbesserung
- Stabile Erzeugung der Oberflächenharmonischen

Erzeugung der zweiten Harmonischen

Femtosekundenlasersysteme, wie der *JETI*-Laser, basieren auf der 'chirped pulse amplification' (CPA). Diese Laser besitzen typischerweise Vorpulse im zeitlichen Abstand von Pikosekunden, die durch ungewünschte Reflexionen in den Laserverstärkern verursacht werden. Außerdem ist durch verstärkte spontane Emission (ASE) ein konstantes Intensitätslevel im Bereich mehrerer Nanosekunden vorhanden. Diese Vorpulsstrukturen können bereits ein Plasma auf der Oberfläche zünden und die Wechselwirkung des Hauptpulses wesentlich beeinflussen. Dieses Vorplasma kann sich bis zur Ankunft des Hauptpulses ausdehnen und bestimmt somit die Plasmaskalenlänge. Da zur Erzeugung der Oberflächenharmonischen kurze Skalenlänge notwendig sind, müssen diese Vorpulsstrukturen möglichst unterdrückt werden [4, 80].

Ein Maß für die Stärke der Vorpulsintensität ist der Pulskontrast K - das Verhältnis der Intensität von Haupt- und Vorpuls. Die Laserpulse des *JETI*-Lasers (800 nm) besitzen Vorpulsstrukturen bei einigen 100 Pikosekunden vor dem Hauptpuls mit einem Pulskontrast von $K = 10^5$ bis 10^7 . Zur Kontrastverbesserung kann am *JETI*-Laser deshalb ein Plasmaspiegelsystem [63] oder die Erzeugung der zweiten Harmonischen eingesetzt werden [9].

Da für eine Autokorrelationsmessung der Oberflächenharmonischen sehr viele XUV-Pulse erzeugt werden müssen, ist der Prozess der Erzeugung der zweiten Harmonischen von praktischen Vorteil. Dazu wird in einem KDP¹-Kristall der Dicke 0,7 mm die zweite Harmonische (engl. 'Second Harmonic Generation' SHG) erzeugt. Die Konversionseffizienz der SHG liegt maximal bei 18 %, was einer Pulsenergie von $\varepsilon_{2\omega} = 100$ mJ entspricht [9]. Die Kontrastverbesserung kann mit $\Delta K = 10^4$ abgeschätzt werden [9]. Die Pulsdauer der zweiten Harmonischen sollte nach Simulationen ca. 45 fs lang sein [24]. Die Fundamentale wird mit zwei dichroitischen Spiegeln herausgefiltert. Die Extinktion beträgt ca. 10^{-5} .

Stabile Erzeugung der Oberflächenharmonischen

Der 400 nm-Laserpuls wird über eine $f/2$ -Off-Axis-Parabel unter 45° Einfall auf ein poliertes Glassubstrat fokussiert. Die Brennweite der Parabel beträgt $f = 11,9$ cm und die Fokusgröße (FWHM) liegt im Mittel bei $2,9 \mu\text{m}^2$, siehe Abbildung 5.4. Die maximale Intensität ergibt sich somit zu $I_{\text{max}} = 1,9 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$, was einem normalisierten Vektorpotential von $a_0 = 1,4$ entspricht. Im Experiment wurden daher nur schwach

¹Kaliumdihydrogenphosphat

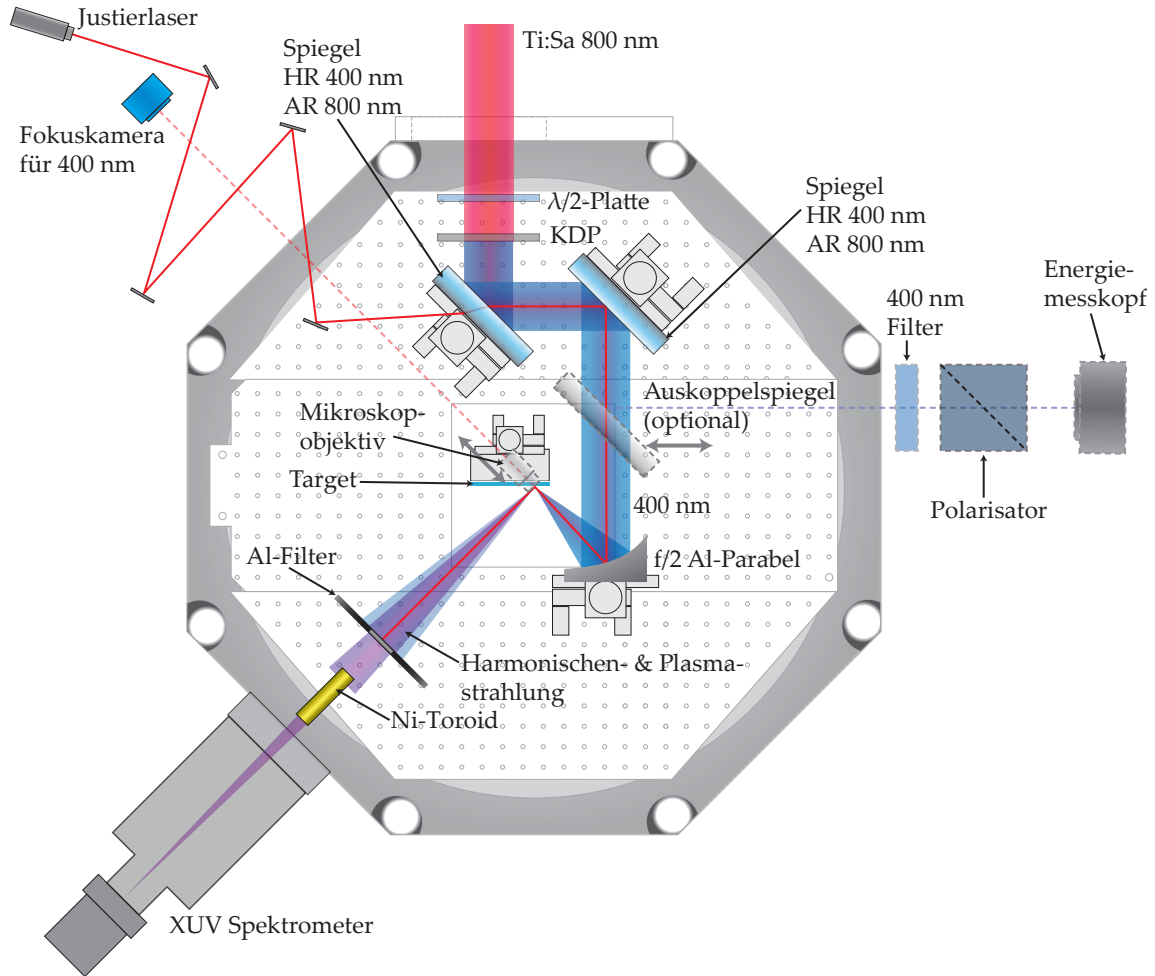


Abb. 5.2.: Aufbau zur Erzeugung der Oberflächenharmonischen in der Draufsicht: In dieser Darstellung wird der 800 nm *JETI*-Strahl (**rot**) von oben in die Kammer eingekoppelt, passiert eine $\lambda/2$ -Platte und den KDP-Kristall zur Erzeugung der zweiten Harmonischen bei 400 nm (**blau**). Über zwei dielektrische Spiegel mit einer hochreflektiven Schicht für 400 nm und einer antireflektiven für 800 nm wird der 400 nm-Strahl von der Fundamentalstrahlung getrennt. Eine Off-Axis-Parabel fokussiert den kollimierten Strahl auf ein Glasziel zu einer Fokusfläche von $2,9 \mu\text{m}^2$ mit einer Intensität (FWHM) von $I = 1,9 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$. Der Laser trifft unter einem Einfall von 45° auf das Glasziel in p-Polarisation. Die erzeugte XUV-Strahlung (**violett**) wird mit einem Transmissionsfilter von der treibenden 400 nm-Strahlung getrennt und von einem abbildenden Spektrometer detektiert [36, 22]. Die Einstellung und Kontrolle der Strahlage erfolgt durch einen (von links) eingekoppelten Justierlaser. Die SHG-Pulse können mit einem optionalen Spiegel ausgekoppelt werden. Die Pulsenergie der SHG kann mit einem Energiemesskopf optimiert werden. Mit einem Polarisator kann außerdem überprüft werden, ob die SHG-Pulse in horizontal polarisiert sind, sodass sie in p-Polarisation auf das Ziel auftreffen. Die Fokusverteilung wird vor dem Experiment mit einem Mikroskopobjektiv und einer CCD-Kamera gemessen. Mit der Verkipfung des Parabelspiegels können die Aberrationen minimiert werden.

relativistische Intensitäten verwendet. An der Glasoberfläche entsteht ein Plasma und über den ROM- bzw. CWE-Prozess werden die Harmonischen der Fundamentalfrequenz

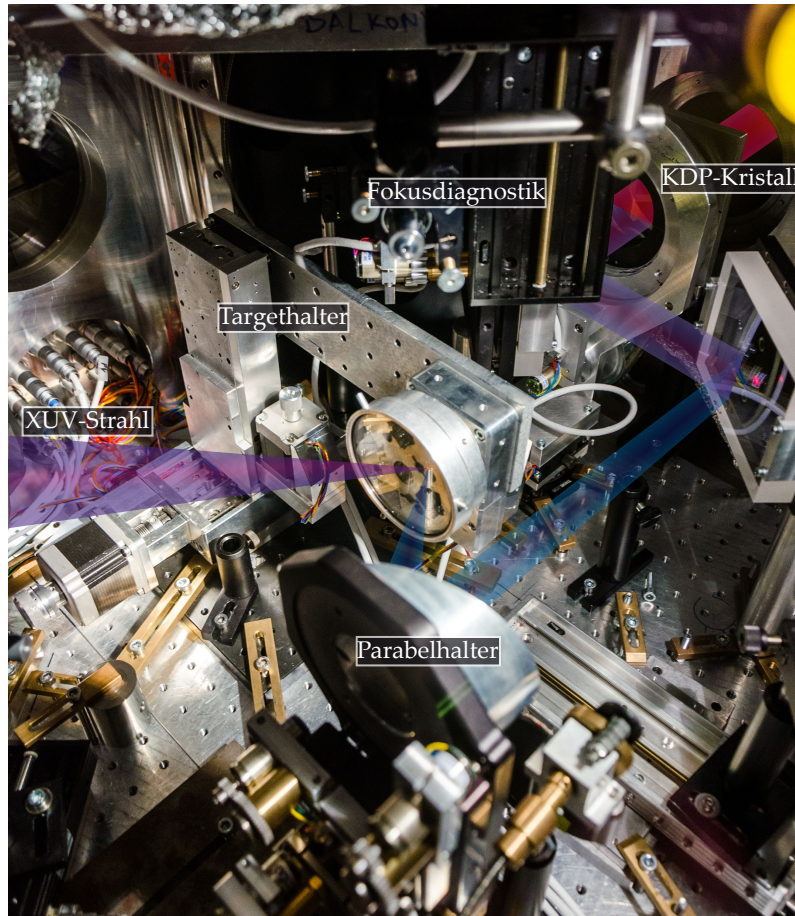


Abb. 5.3.: Blick in die Experimentierkammer zur Erzeugung der Oberflächenharmonischen: Der *JETI*-Laserstrahl wird vom oberen rechten Rand in die Vakuumkammer geführt und passiert eine $\lambda/2$ -Platte und einen KDP-Kristall. Der dabei erzeugte 400 nm-Strahl wird durch Umlenkspiegel auf den Off-Axis-Parabolspiegel gelenkt. Der Parabolspiegel fokussiert den intensiven Laserpuls auf eine Glasoberfläche. Die ROM-Harmonischen werden in Reflexion an der Plasmaoberfläche erzeugt und mit einem XUV-Spektrometer detektiert (nicht im Bild zu sehen). Zur Fokusdiagnostik wird ein Mikroskopobjektiv in den Strahlengang gefahren und mit einer CCD-Kamera (nicht im Bild) beobachtet.

(400 nm) in der Richtung des reflektierten Laserstrahls emittiert. Bei unbeschichteten Glastargets wird dabei ein Plasma mit einer Elektronendichte (siehe Gleichung 2.32) von $n_e = 400 n_c$ erzeugt. Um die Elektronendichte zu verringern, können auch Glastargets mit Beschichtung eingesetzt werden. Mit dem verwendeten Fotolack ergibt sich eine Elektronendichte von $n_e = 200 n_c$. So lässt sich die Cut-Off-Energie² der CWE-Harmonischen von der 9-ten auf die 7-te Harmonische (21 eV bzw. 57 nm) absenken. Unter Verwendung eines Aluminium-Transmissionfilters, siehe dazu Abschnitt 4.3, ist es somit möglich, die CWE-Harmonischen als auch die Fundamentale nahezu vollständig zu blocken. Dabei kommen Filter der Dicke von $0,2 \mu\text{m}$ bzw. $0,4 \mu\text{m}$ zum Einsatz. Die transmittierten ROM-

²Die spektrale Obergrenze der emittierten Harmonischen.

Harmonischen können dann im Ionisationsexperiment eingesetzt werden.

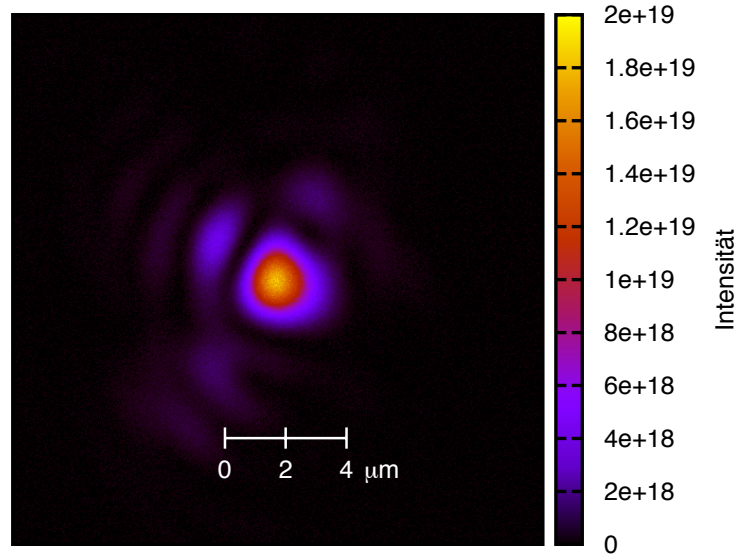


Abb. 5.4.: **Intensitätsverteilung des 400 nm-Pulses in der Fokalebene:** Die Fokusfläche (FWHM) beträgt $2,9 \mu\text{m}^2$. Dabei wurde berücksichtigt, dass bei einem Einfallswinkel von 45° die Fokusfläche in der Ebene der Target-Oberfläche um $\sqrt{2}$ gestreckt wird.

Die Oberflächenharmonischen werden zunächst mit einem abbildenden XUV-Spektrometer [36, 22] detektiert. Das Spektrometer besteht aus einem Nickel-beschichteten Toroidspegel und einem Gold-Transmissionsgitter mit 1000 Linien/mm. Das XUV-Spektrum wird mit einer CCD-Kamera (Andor D0940P) aufgenommen, siehe Abbildung 5.5. Das Spektrometer ist hinsichtlich der Photonenzahl kalibriert, so dass das XUV-Spektrum absolut angegeben werden kann [22].

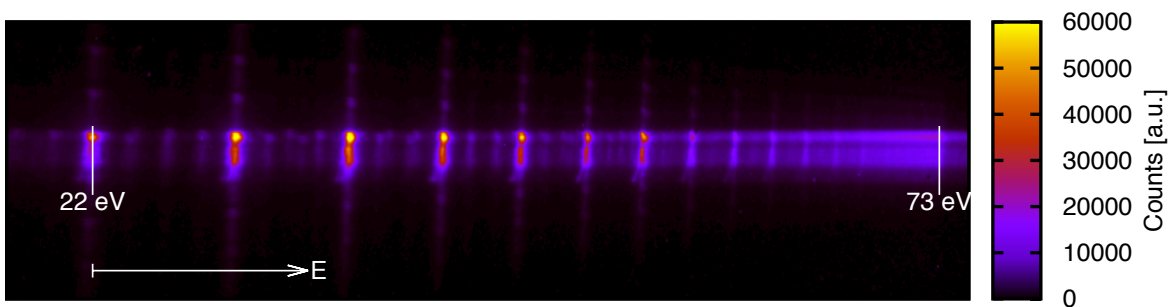


Abb. 5.5.: **Detektorbild des XUV-Spektrometers bei der Erzeugung der ROM-Harmonischen:** Das XUV-Spektrum wird in waagerechter Richtung aufgespannt. Die Harmonischenlinien können eindeutig aufgelöst werden. Zwischen und über der Harmonischenemission ist vereinzelt die Beugung am Stützgitter des Transmissionsgitters zu erkennen. Die Photonenenergie nimmt von links nach rechts zu. Am rechten Rand der Aufnahme fällt das Signal abrupt ab. Dort befindet sich die Absorptionskante des Aluminiumfilters (73 eV), die zur Kalibrierung des Spektrums dient.

5.2. Teil-Experiment 2: Fokussierung & Ionisation mit Harmonischenstrahlung

Nachdem die ROM-Harmonischen stabil erzeugt wurden, konnten in diesem Teil-Experiment die Fokussierung der XUV-Pulse getestet und erste Ionisationsexperimente mit Harmonischenstrahlung am *JETI*-Laser durchgeführt werden. Das Teil-Experiment gliedert sich in die folgenden Aufgaben:

- Test der XUV-Optiken
- Ionisationsexperimente mit Harmonischenstrahlung

Der optische Aufbau und die dazugehörige Vakuumkammer ist in Abbildung 5.6 dargestellt. Der Hintergrunddruck in der Vakuumkammer beträgt $\approx 10^{-5}$ mbar.

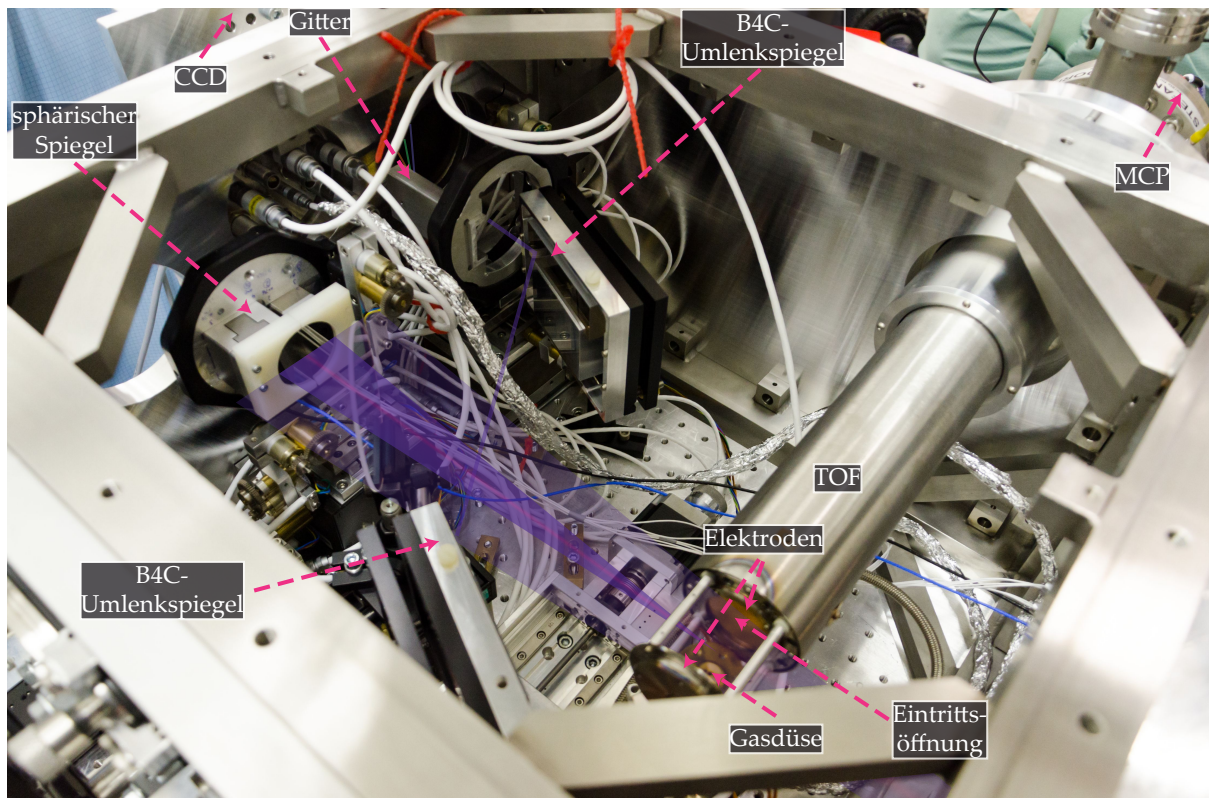


Abb. 5.6.: Blick in die Experimentierkammer zur Autokorrelation der ROM-Harmonischen: Der XUV-Strahl kommt von rechts unten in die Vakuumkammer und wird von dem geteilten sphärischen XUV-Breitband-Spiegel (halb links im Bild) in den Gasjet fokussiert. Im Gasjet ionisieren intensiven XUV-Pulse die Atome bzw. Moleküle. Über zwei B₄C-Umlenkspiegel gelangt der äußere Teil der XUV-Strahlung zu Diagnosezwecken zu einem XUV-Spektrometer. An einem Reflexionsgitter (Hitachi 1200 Linien/mm) erfolgt die spektrale Aufspaltung. In der Fokalebene des Reflexionsgitters wird das XUV-Spektrum von einer XUV-Kamera (nicht mehr im Bild) aufgenommen.

5.2.1. Test der XUV-Optiken

Der optische Aufbau wurde zunächst grob mit einem Justagelaser eingerichtet und anschließend hinsichtlich seiner Funktionalität getestet. Dazu wurde die Fokalebene des sphärischen Spiegels mit einem Mikroskopobjektiv auf eine CCD abgebildet um die Intensitätsverteilung des treibenden 400 nm-Laserpulses in Abhängigkeit von der Verzögerung des Halbspiegels zu untersuchen. Hierfür wurde ein Strahlteiler unter Verwendung eines Einfallswinkel von 45° in den fokussierenden Strahlengang des XUV-Spiegels eingebracht, siehe Abbildung 4.8.

Mit der Abbildung der Intensitätsverteilung konnte zunächst die räumliche Lage der Foki beider Spiegelhälften bestimmt und überlappt werden. Darüber hinaus wurden die Aberrationen des sphärischen Spiegels korrigiert. Dieses Vorgehen führt zu einer Optimierung der Fokusfläche für 400 nm als auch für die XUV-Strahlung.

Die zeitliche Verzögerung wurde in zweifacher Hinsicht getestet. Zum einen sollte durch einen groben Versatz die Kohärenzzeit des Laserpulses bestimmt werden. Zum anderen wird durch einen kleinen Versatz die relative Phasenbeziehung der Pulshälften bestimmt.

Untersuchung der Laserpuls-Einhüllenden

Für die Untersuchung der Kohärenzlänge des Laserpulses wurde der Piezo-Aktuator in Schrittlängen von $1\ \mu\text{m}$ und maximal um $80\ \mu\text{m}$ verfahren. Das für jede Position aufgenommene Kamerasignal wurde hinsichtlich der Fokusintensität (Counts in Halbwertsfläche) untersucht. Die Verteilung proportional zur Fokusintensität ist in Abbildung 5.7 dargestellt. Die daraus ermittelte Einhüllende besitzt eine Breite von $l_{\text{FWHM}} \approx 60\ \mu\text{m}$,

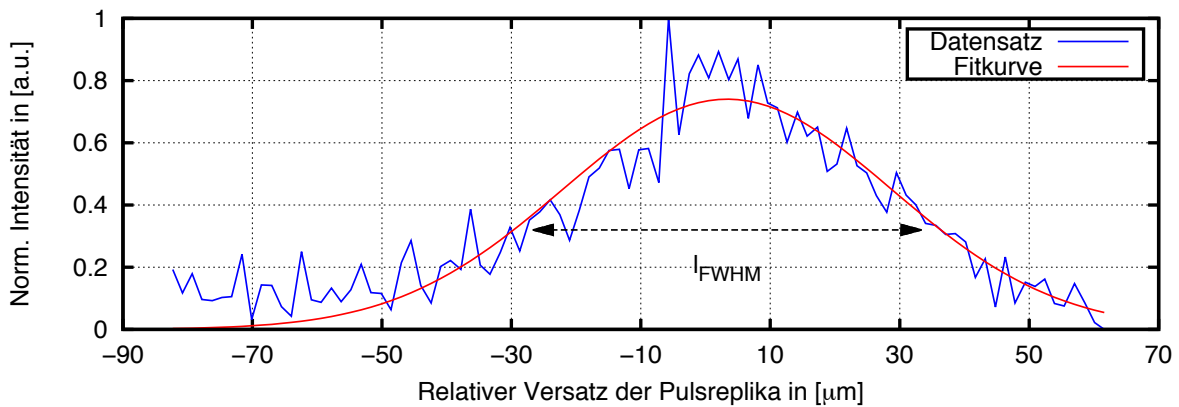


Abb. 5.7.: **Verlauf der Laserpuls-Einhüllenden:** Die Messkurve (**blau**) zeigt über den zeitlichen Versatz die normierte Intensität. Ihre Breite lässt sich durch eine Fitfunktion (**rot**) bestimmen. Die Breite beträgt ca. $60\ \mu\text{m}$ bzw. 200 fs.

was einer Kohärenzzeit von

$$\tau_C \approx 200\ \text{fs} \quad (5.1)$$

entspricht. Die mit dieser linearen Autokorrelation gemessene Kohärenzzeit liegt damit deutlich über der experimentell ermittelten Pulsdauer von 30 fs des *JETI*-Lasers bzw. den 45 fs [24] der zweiten Harmonischen. Die gemessene Kohärenzzeit von 200 fs kann deshalb nur mit einer reduzierten spektralen Bandbreite erklärt werden.

Untersuchung der Phaseneinflüsse des zeitlichen Versatzes auf die Intensitätsverteilung

Für die Untersuchung des Einflusses des zeitlichen Versatzes auf die Gestalt der Intensitätsverteilung wurde der Piezo-Aktuator in Schrittlängen von 40 nm und insgesamt um 4,5 μm verfahren. Die Halbwertsfläche bzw. die Fokusfläche zeigt bei der Veränderung des Pulsversatzes einen periodischen sprunghaften Anstieg und Abfall, siehe Abbildung 5.8. Das lässt sich damit erklären, dass die Pulsreplika mit einer Versatz-abhängigen Phase die

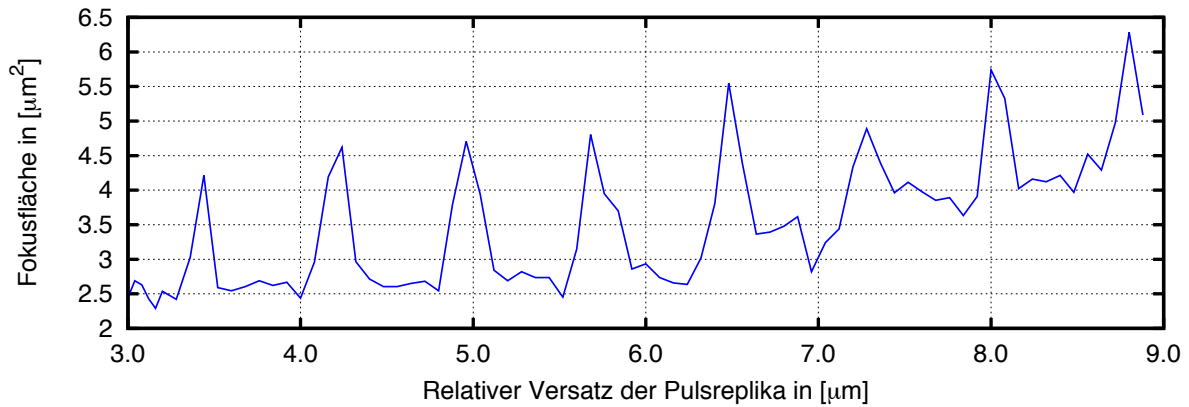


Abb. 5.8.: **Sphärenfokusfläche im feinen Verfahren und der Ausbildung des Doppelfokus:** Die Halbwertsflächen zeigen in Abständen von ca. 760 nm (bezogen auf den Versatz beider Replika zueinander) eine abrupte Veränderung der Fokusfläche. An den Stellen großer Foki hat sich durch destruktive Interferenz ein Doppelfokus herausgebildet.

Fokalebene des sphärischen Spiegels erreichen und interferieren. Je nach Phasenlage des verschobenen Pulsreplika zum unterschobenen Pulsreplika interferieren beide Pulshälfte konstruktiv bzw. destruktiv im Fokus. Für den Fall der destruktiven Interferenz im Fokus ergibt sich konstruktive Interferenz außerhalb des zentralen Fokusbereiches. Es entsteht somit ein Doppelfokus mit verringerter Spitzenintensität, siehe Abbildung 5.9.

Durch die Ausmessung der Periodenlänge der Bildung des Doppelfokus kann die Mittenwellenlänge des Pulses abgeschätzt werden. Die Periodenlänge des Doppelfokus lässt sich zu

$$\lambda \approx 766 \text{ nm} \quad (5.2)$$

bestimmen. Sie weicht damit ca. 30 nm von der Mittenwellenlänge des *JETI*-Lasers ab.

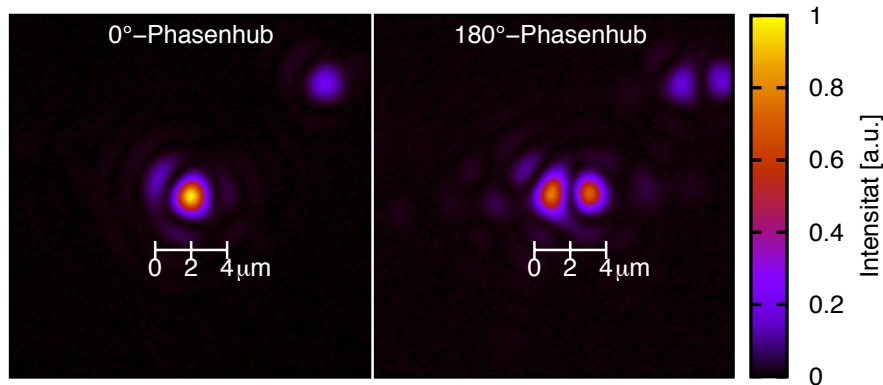


Abb. 5.9.: **Intensitätsverteilung bei Versatz der Spiegelhälften:** (Links) Die Felder beider Pulshälften bilden im Fall der konstruktiven Überlagerung einen Punktfokus. (Rechts) Sind die Pulsreplika durch den Versatz des Piezo-Aktuators um 180° zueinander phasenversetzt, interferieren die Felder im Fokus destruktiv. Aufgrund der räumlich ausgedehnten sphärischen Wellenfront kommt es in den Randbereich zu einer konstruktiven Interferenz - der Doppelfokus entsteht.

Diskussion der linearen Autokorrelationsmessung

Zur Messung der linearen Autokorrelation musste der treibende Laserpuls allerdings mit einem Spiegelsystem abgeschwächt werden, um die Glastarget-Oberfläche nicht zu zerstören. Da es sich bei diesem Abschwächersystem um verkippte dielektrische Spiegel handelt, wird nur der kurzwellige Anteil des Laserspektrums transmittiert. Es ist anzunehmen, dass für diesen Spektralbereich die SHG sehr ineffizient erzeugt wird. Deshalb ist es sehr wahrscheinlich, dass statt des SHG-Pulses der spektral beschnittene Fundamentalphotonenpuls vermessen wurde. Dies würde somit die Periodenlänge der Autokorrelation von $\lambda \approx 766 \text{ nm}$ und die Kohärenzzeit von 200 fs erklären. Man hat dennoch demonstriert, dass sich mit dem Aufbau prinzipiell eine Autokorrelation mit einer Nanometer-Präzision durchführen lässt.

5.2.2. Erste Ionisationsexperimente mit Harmonischenstrahlung

Für die Durchführung von Ionisationsexperimenten mit XUV-Pulsen wurde eine Gasdüse verwendet, die sich in der Fokalebene des sphärischen XUV-Spiegels befindet. Die XUV-Pulse ionisieren so die zugeführten Gase als auch die in der Vakuumkammer befindlichen Restgase im Fokus des sphärischen Spiegels. Die verwendeten Gase waren dabei Helium, Neon und Xenon. Die erzeugten Ionen wurden mit einem differentiell gepumpten Flugzeit-Massenspektrometer³ aufgenommen, siehe Abbildung 5.10. Die Ionen werden dabei von einem umgebenden statischen elektrischen Feld zum Detektor abgelenkt. Das Feld wird seinerseits durch eine angelegte Spannung an den umgebenden Elektroden

³von Stefan Kaesdorf Geräte für Forschung und Industrie, München

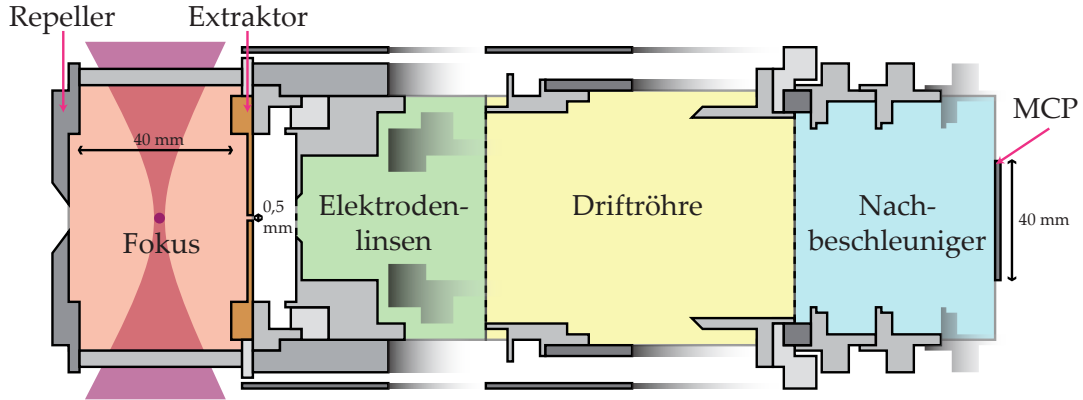


Abb. 5.10.: **Prinzipskizze des Flugzeit-Massenspektrometers:** Das angelegte statische elektrische Feld zwischen den Elektroden, dem Repeller und Extraktor, lenkt die erzeugten Ionen aus dem XUV-Fokus in Richtung der Extraktor-Elektrode ab. Die Ionen passieren durch eine Öffnung der Extraktor-Elektrode. Im Bereich der Elektrodenlinsen werden die Ionen aus den verschiedenen Fokusbereichen fokussiert. Die Separation der kinetischen Energien erfolgt in der Drift- bzw. Flugröhre, in der unterschiedlich schnelle Ionen räumlich und zeitlich getrennt werden. Anschließend passieren die Ionen einen Bereich der Nachbeschleunigung und erreichen schließlich als zeitlich separierte Ionenverteilung die Mikrokanalplatte. Sie wandelt die Ionenverteilung in ein zeitliches Spannungssignal, das Flugzeitspektrum, um.

(Repeller und Extraktor) erzeugt. Der Elektrodenabstand beträgt dabei $d_{\text{Elektr}} = 40 \text{ mm}$ und das angelegte Potential ist $U = -250 \text{ V}$. Im Extraktor befindet sich eine kleine Öffnung $d_{\text{Loch}} = 0,5 \text{ mm}$, die als *differentielle Blende* zwischen Vakuumkammer und Massenspektrometer dient. Durch die Anpassung der Blendenöffnung kann die Akzeptanz des Flugzeitspektrometers verändert werden. Dabei ist entscheidend, dass die Projektion des XUV-Fokus auf der Öffnung der Blende liegt. Dahinter passieren die Ionen einen Bereich der Extraktionsoptik, eine feldfreie Drift- bzw. Flugröhre (engl. Time-of-Flight, kurz TOF) und einen Bereich der Nachbeschleunigung, bis sie schließlich den Detektor, eine Mikrokanalplatte, erreichen. Dort verursachen die ankommenden geladenen Teilchen in Abhängigkeit ihrer Flugzeit von Gasdüse zur Mikrokanalplatte aufgenommen ein zeitliches Spannungssignal. Man spricht vom Flugzeitspektrum. Die Flugzeit der einzelnen Ionen ist abhängig von der Beschleunigung im statischen elektrischen Feld. Sie wird bestimmt von der Ionenladung, der Ionenmasse und dem angelegten elektrischen Potential. Die gewonnene kinetische Energie beträgt:

$$E = \frac{m}{2}v^2 = qU \quad (5.3)$$

Dabei ist m die Ionenmasse, q der Ladungszustand und U elektrische Potential der Elektroden. Die Flugzeit der einzelnen Ionen skaliert somit mit der Wurzel der spezifischen

Masse⁴ m/q :

$$t = \sqrt{\frac{s^2}{2U}} \sqrt{\frac{m}{q}} \quad (5.4)$$

Prinzipiell kann gesagt werden, dass für steigende Ionenmassen die Flugzeit zunimmt.

Aufgenommene Flugzeitspektren

Die Aufnahme der zeitlichen Spannungssignale $F(t)$ erfolgte mit einem digitalen Oszilloskop (Tektronix DPO 70804). Dabei wurden stets zwei Spannungsverläufe detektiert. Zum einen das am Laserpuls gekoppelte Triggersignal und zum anderen das Flugzeit-Signal der Ionen. Der Beginn der Flugzeit ist dabei an die ansteigende Triggerflanke gekoppelt. In Abbildung 5.11 ist beispielsweise ein Ionen-Flugzeitspektrum unter Zufuhr von Xenon dargestellt. Im Flugzeitspektrum lassen sich einzelne Ionen wie z.B. die Restgase H_2^+ , N_2^+ ,

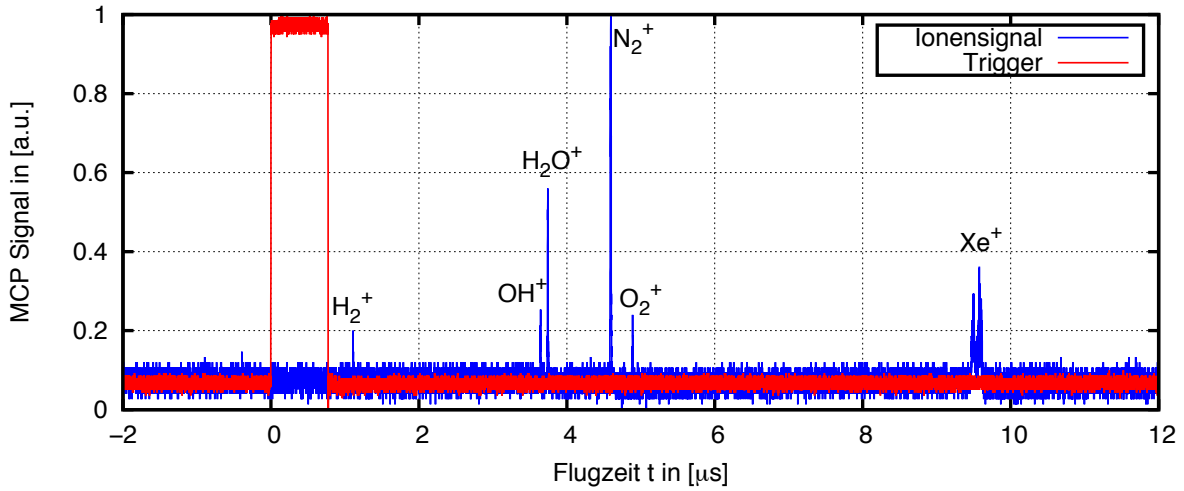


Abb. 5.11.: Beispiel eines Flugzeitspektrums bei der Zufuhr von Xenon: Mit der ansteigenden Triggerflanke (rot) wird die Startzeit des Flugzeitspektrums (blau) gesetzt. Beide Signale sind normiert. Im Flugzeitspektrum sind deutlich Peaks bei $t \approx 1 \mu\text{s}$, $t \approx 3,5 - 4 \mu\text{s}$, $t \approx 4,5 - 5 \mu\text{s}$ und $t \approx 9,5 \mu\text{s}$ zu sehen. Sie entsprechen dem ionisierten H_2^+ , den ionisierten Restgasen wie N_2^+ , O_2^+ usw. und den ionisierten Isotopen von Xenon. Die längeren Flugzeiten von Xenon rühren im einfach geladenen Zustand von der höheren atomaren Masse ($m \geq 128 \text{ a.u.}$) im Vergleich zur atomaren Masse der Restgase ($m \leq 32 \text{ a.u.}$).

O_2^+ und das zugeführte Xe^+ entsprechend ihrer spezifischen Masse auflösen. Es ist sogar möglich die einzelnen Xenon-Isotope voneinander getrennt aufzulösen:

Xenon besitzt aufgrund seiner hohen Ionenmasse $m \geq 128 \text{ a.u.}$ eine längere Flugzeit als die Restgase wie O_2^+ und N_2^+ ($m \leq 32 \text{ a.u.}$). Neben der Messung bei zugeführtem Xenon wurden noch Untersuchungen der Ionen-Flugzeitspektren bei der Zufuhr von Helium (Abbildung 5.12) bzw. bei Neon (Abbildung 5.13) vorgenommen.

⁴Die spezifischen Masse entspricht dabei der inversen spezifischen Ladung $(q/m)^{-1}$.

Isotop	rel. Häufigkeit [%]	Flugzeit t [μs]
Xe-129 ⁺	26,40	9,5008
Xe-131 ⁺	21,29	9,5754
Xe-132 ⁺	26,90	9,5987

Tab. 5.1.: **Die häufigsten Xenon-Isotope und ihre Flugzeiten:** In diesem Messaufbau liegen die Flugzeiten der einzelnen Xenon-Isotope bei ca. $t \approx 9,5 \mu\text{s}$. Die relative Häufigkeit ist [78] entnommen.

Bei der Verwendung von Helium-4 zeigen die Flugzeitspektren ein zusätzliches Signal bei ca. $1,8 \mu\text{s}$, siehe Abbildung 5.12. Dieses Signal entspricht dem einfach geladenen Helium-Ion ($m = 4 \text{ a.u.}$). Es liegt aufgrund seiner atomaren Masse bzw. spezifischen Masse im Flugzeitspektrum vor den ionisierten Restgasen wie OH^+ und H_2O^+ aber hinter dem Signal des noch leichteren H_2^+ . Einzelne atomare Fragmente wie N^+ oder O^+ , die auch

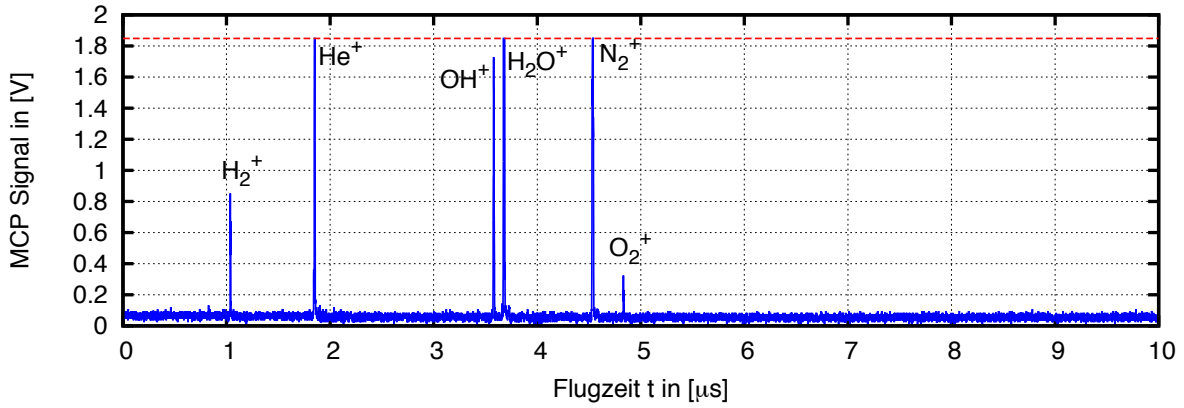


Abb. 5.12.: **Ionen-Flugzeitspektrum bei der Zufuhr von Helium:** Das einfach-ionisierte Helium ($m = 4 \text{ a.u.}$) besitzt eine Flugzeit von ca. $t \approx 1,8 \mu\text{s}$ und befindet sich im Flugzeitspektrum zwischen dem leichteren H_2^+ ($m = 2 \text{ a.u.}$) und OH^+ ($m = 18 \text{ a.u.}$). Die rote Linie deutet bereits auf eine Übersteuerung der Mikrokanalplatte hin.

als nichtlineares Ionensignal für eine Autokorrelation in Frage kommen [37], sind nicht beobachtet worden. Äußerst nachteilig ist außerdem das Vorhandensein des starken H_2^+ Signals, welches im Flugzeitspektrum mit doppelt ionisiertem Helium zusammenfällt. Unter diesen Bedingungen kann deshalb keine Autokorrelation mit der Helium-Doppelionisation durchgeführt werden. Die Verwendung des leichteren Helium-3 Isotops würde eine nicht-lineare Autokorrelation mit Helium ermöglichen. Dieses sehr teure und zudem schwer zu beschaffende Gas wurde allerdings erst nach dem Experiment geliefert.

Bei der Gaszufuhr von Neon zeigen die Ionen-Flugzeitspektren ein zusätzliches Signal bei ca. $3,7 \mu\text{s}$. Mit der Ionenmassen von $m = 20 \text{ a.u.}$ liegt es im Flugzeitspektrum genau zwischen den leichten Restgasen wie H_2O^+ mit $m = 18 \text{ a.u.}$ und den schwereren wie N_2^+ mit $m = 28 \text{ a.u.}$. Höhere Ladungszustände von Neon sind mit diesen Einstellungen allerdings nicht zu beobachten.

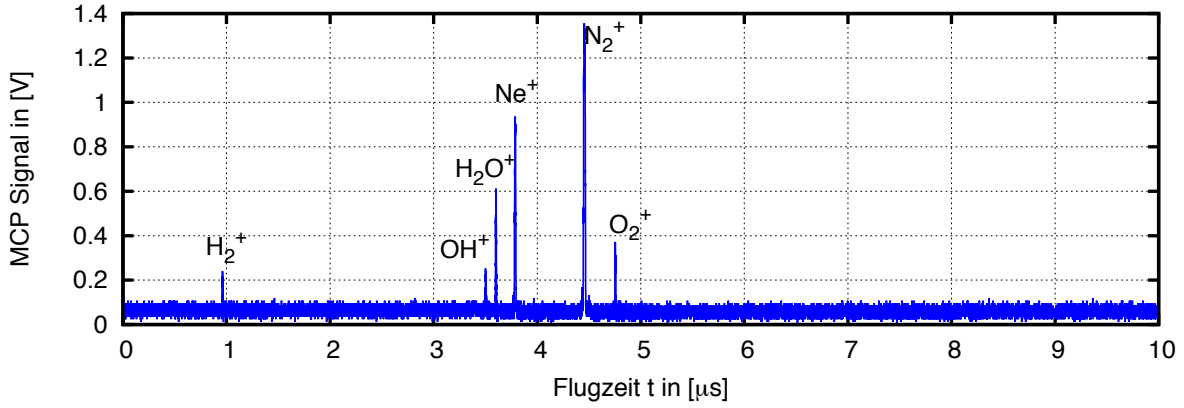


Abb. 5.13.: **Ionen-Flugzeitspektrum bei der Zufuhr von Neon:** Das einfach-ionisierte Neon ($m = 20$ a.u.) besitzt eine Flugzeit von ca. $t \approx 3,7 \mu\text{s}$ und liegt damit zwischen den leichteren Restgas-Anteilen wie H_2O^+ und OH^+ und den schwereren Restgasen wie N_2^+ ($m = 28$ a.u.) und O_2^+ .

Analyse der Flugzeitspektren

Für eine quantitative Analyse der Flugzeitspektren wurden die bisher manuell bestimmten Flugzeiten einzelner Ionen dazu verwendet, den formellen Zusammenhang zwischen der ermittelten Flugzeit t und der spezifischen Masse m/q herzustellen

$$t \longrightarrow m/q \equiv \frac{m}{q}(t) \quad (5.5)$$

um einen Proportionalitätsfaktor \mathfrak{K} zu bestimmen. In der Flugzeit der Ionen (Gleichung 5.4)

$$t\left(\frac{m}{q}\right) = \sqrt{\frac{s^2}{2U}} \sqrt{\frac{m}{q}} = \mathfrak{K} \cdot \sqrt{\frac{n}{k}} \quad (5.6)$$

entspricht $\mathfrak{K} = \sqrt{s^2/2U} \cdot \sqrt{u/e}$ dem gesuchten Proportionalitätsfaktor. Dabei ist u die atomare Masseneinheit und e die Elementarladung. Sie ergeben jeweils mit den ganzzahligen Vielfachen n bzw. k die Ionenmasse $m = n \cdot u$ bzw. die Ionenladung $q = k \cdot e$. Der Abgleich zwischen der Flugzeit t und der spezifischen Masse m/q ergibt den Proportionalitätsfaktor:

$$\mathfrak{K} = 0,783 \pm 0,008 \mu\text{s} \quad (5.7)$$

Mit diesem Proportionalitätsfaktor lässt sich die Masse eines Ions, wie Tabelle 5.2 zeigt, mit einer Abweichung von ca. ± 1 a.u. zwischen berechneter und tabellierter Ionenmasse bestimmen. Obwohl mit dieser Genauigkeit die einzelnen Peaks im Flugzeitspektrum nicht eindeutig einem Ion zugeordnet werden können, ist es dennoch ausreichend, die Ionisationsraten bzw. die Ausbeute der Ionen bei größeren Differenzen der Masse $|\Delta m| > 1$ a.u. zu bestimmen. Das trifft für alle gefundenen Ionen, ausgenommen OH^+ und H_2O^+ , sogar bis zu dem zweifach geladenen Zustand zu.

Teilchen	m_{tab} a.u.	m_{fit} a.u.	$ \Delta m $ a.u.
N_2^+	27,99	29,02	1,03
Xe-129^+	128,86	128,47	0,39
Xe-132^+	131,86	130,99	0,87

Tab. 5.2.: **Beispielhafte berechnete Ionenmassen mit dem Proportionalitätsfaktor \mathcal{K} :** Die tabellierten Ionenmassen m_{tab} sind mit der Bethe-Weizsäcker-Formel berechnet worden. Die mit dem Proportionalitätsfaktor berechneten Ionenmassen m_{fit} weichen um bis zu eine atomare Masseneinheit $|\Delta m| \approx 1$ a.u. von den tabellierten Werten m_{tab} ab.

Aufgrund der Tatsache, dass besonders die höher geladenen Ionen des zugeführten Gases während der Messung nur schwer zu erkennen waren, ist es erforderlich gewesen, den Gasfluss und/oder die angelegte Spannung der MCP zu erhöhen. Die höher geladenen Ionen entstehen (teilweise) über die nichtlineare Ionisation und bilden damit die notwendige Bedingung einer nichtlinearen Autokorrelation der ROM-Pulse. Mit der Erhöhung der MCP-Spannung werden jedoch alle Signale gleichermaßen verstärkt, so dass es dadurch zur Sättigung der MCP durch die Restgase kommen kann. Es zeigt sich, dass die Sättigung der MCP das nachfolgende MCP-Signal durch Überschwingungen negativ beeinflusst. Mit der Erhöhung des Gasflusses kann zwar erreicht werden, dass das nichtlineare Signal des zugeführten Gases signifikant steigt, doch das führt oft zur Sättigung der Mikrokanalplatten durch das lineare Signal des eingeleiteten Gases oder auch der Hintergrundgase, siehe Abbildung 5.14. Es hat sich außerdem herausgestellt, dass ein Ionensignal, welches

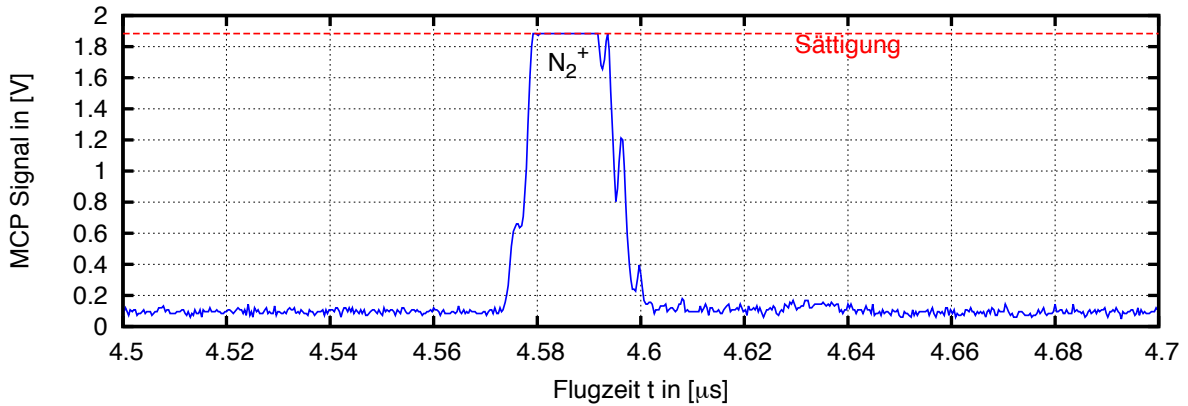


Abb. 5.14.: **Sättigung des Flugzeitspektrums:** Das N_2^+ -Signal einer beliebigen Aufnahme zeigt deutlich eine Sättigung des Signal, bei der Erhöhung des Gasflusses und der MCP-Spannung. Die Sättigung setzt bei einer Signalspannung von $U = 1,8840$ V ein. Aufgrund der Sättigung kann keine Aussage Ionenausbeute getroffen werden.

zeitlich nach einem gesättigten MCP-Signal gemessen wird, trotz identischem XUV-Fluss sehr stark schwankt. Die Aussagekraft eines solchen Signals muss daher stark bezweifelt werden. Die Übersteuerung der Signals durch Hintergrundgase ist deshalb ein großes Hindernis für die nichtlineare Autokorrelation der ROM-Pulse. In einem weiteren Experiment

zur nichtlinearen Autokorrelation muss deshalb der Hintergrunddruck stark reduziert werden.

Um dennoch ein nichtlineares Signal zu erhalten, wurde die Gaszufuhr erhöht. Dies führte allerdings bei längeren Flugzeiten, wie z.B. bei Xe^{2+} und Xe^+ , zu einem stark verrauschten Signal (bzw. Verschmierungen), siehe Abbildung 5.15. Das verrauschte Signal besitzt

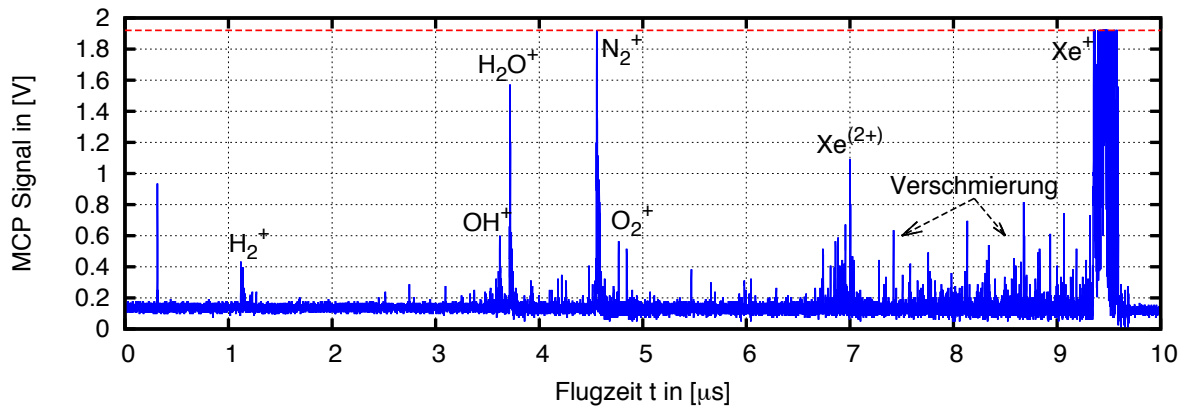


Abb. 5.15.: **Verschmierung des Flugzeitspektrums:** Infolge des erhöhten Gasflusses tauchen im Flugzeitspektrum zusätzliche Signale auf. Ihre Herkunft ist nicht geklärt. Diese Verschmierung behindert die Bestimmung der Ionenausbeute besonders für Xe^{2+} bzw. Xe^+ .

eine zeitliche Breite, in der sich keine anderen Ionensorten aufgrund ihrer spezifischen Ladung aufhalten können. Bei diesem Signal ist allerdings nicht eindeutig geklärt, ob es sich dabei um Ionen handelt oder gemessene Artefakte sind.

Methoden zur besseren Analyse der Ionenspektren

Die Verschmierung bzw. Artefakte der Flugzeitspektren sind in zweierlei Hinsicht negativ für die Auswertung der Ionensignale. Erstens kann so nicht bestimmt werden, welcher Anteil des verschmierten Verlaufes Informationen zur Ionenausbeute enthält und zweitens ist unklar, wie breit der informationstragende Anteil der Verschmierung überhaupt ist. Um generell noch Informationen zu den Ionenausbeuten bei Anwesenheit dieser Verschmierung bzw. Artefakte zu erhalten, ist daher jedem relevanten Ion ein breiter Bereich bzw. ein Intervall der Flugzeit zugeordnet worden, siehe Abbildung 5.16. Innerhalb dieses Bereiches wurde das gesamte Signal integriert und dem entsprechenden Ion zugeordnet. Dadurch wurden die möglichen Fehler in der Bestimmung der Breite und der Lage des relevanten Anteils in der Verschmierung umgangen. Jedoch besteht u.U. die Gefahr, gerade für leichte Ionen und kleine Flugzeitdifferenzen der Ionen, dass nahe liegende Ionen dem falschen Integrationsintervall und somit dem falschen Ion zugeordnet werden. Dies wurde billigend in Kauf genommen, da die Methode für schwere Ionen (wie z.B. Xenon) mit ihren großen zeitlichen Abständen stabil gegenüber der Zuordnung ins falsche Intervall

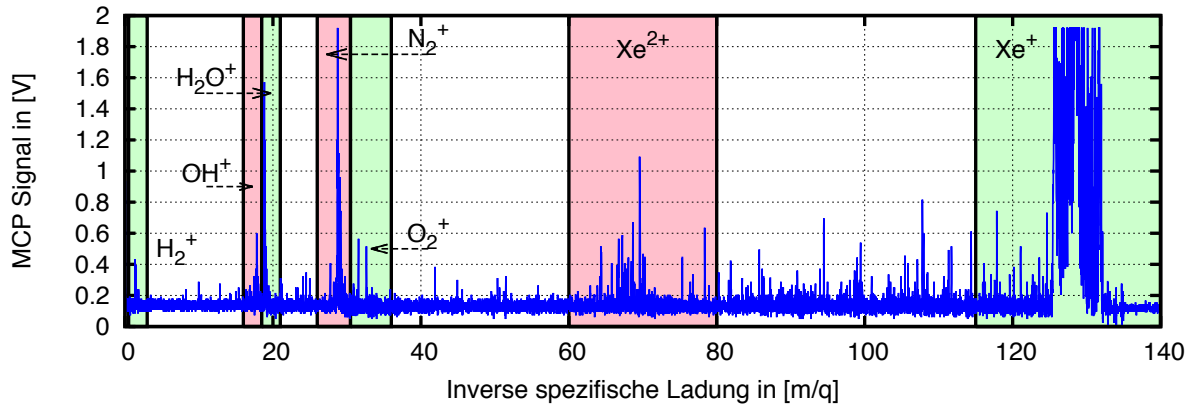


Abb. 5.16.: **Integrationsintervalle des Flugzeitspektrums:** Die Integrationsbereiche der einzelnen Ionen sind hier farbig markiert.

ist.

Da die Erzeugung der ROM-Harmonischen als stark nichtlinearer Prozess empfindlich auf Schwankungen der Laserintensität reagiert, findet aufgrund der Fluktuation des Laserpulses eine Schuss-zu-Schuss-Fluktuation in Stärke und Bandbreite der erzeugten ROM-Harmonischen statt. Diese Fluktuation mündet in einer deutlichen Variation der einzelnen Flugzeitspektren. Deshalb ist das für jeden Laserschuss aufgenommene XUV-Spektrum mit dem Flugzeitspektrum verglichen worden. Die so erhaltene Korrelation zwischen dem Ionensignal und der Stärke der XUV-Strahlung hilft bei der Zuordnung der Flugzeitspektren in Klassen verschiedener Photonenflüsse. Die detektierten XUV-Spektren, siehe Abbildung 5.17, sind nach den folgenden vier Parametern beurteilt worden:

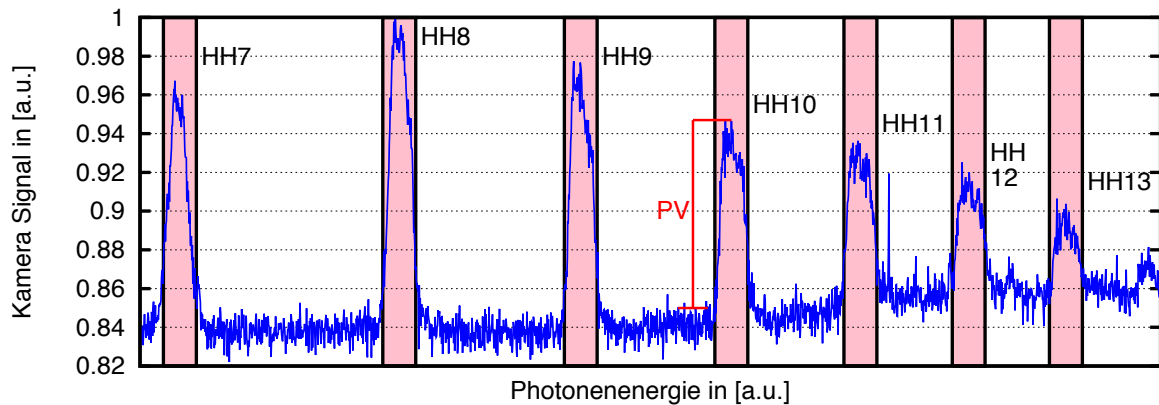


Abb. 5.17.: **Line-Out eines ROM-Harmonischenspektrums für niedrige Harmonischenordnungen:** Mit dem XUV-Spektrometer (Abschnitt 4.4) wurde der Harmonischenbereich von der 7-ten bis zur 13-ten Harmonischen, bezogen auf die 400 nm-Fundamentalstrahlung, detektiert. Die Breite des verwendeten Intervalls für die einzelnen Harmonischen ist pink markiert. Der *PV*-Wert gibt die relative Signalstärke einer einzelnen Harmonischen gegenüber ihrer spektralen Umgebung an.

1. Ordnung der ROM-Harmonischen: \mathcal{O}_{HH}

2. Signal innerhalb der Breite einer ROM-Harmonischen: \mathcal{S}_{HH}
3. Stärke der ROM-Harmonischen im Vgl. zur spektralen Umgebung: \mathcal{C}_{HH} (Peak-to-Valley-Wert)
4. Konversionseffizienz der CCD-Kamera des XUV-Spektrometers: \mathcal{E}_{HH} (Counts/Photonen)

Kombiniert ergibt das eine zum Photonenfluss Q proportionale Größe:

$$Q \propto \sum_{\text{HH}} \left[\mathcal{O}_{\text{HH}} \times \mathcal{S}_{\text{HH}} \times \mathcal{C}_{\text{HH}} \times \mathcal{E}_{\text{HH}} \right] \quad (5.8)$$

Für den Photonenfluss wurden, unter Verwendung eines niederlichten Plasmatargets (mit Fotolack-beschichtetes Glastarget) mit einem abgesenkten CWE-Cut-Off bei $\varepsilon_{\text{ph}} = 21$ eV, nur die ROM-Harmonischen ab der achten Harmonischen (HH8) berücksichtigt. Folglich lässt sich auch vom *relativen⁵ Photonenfluss der ROM-Harmonischen* sprechen. Für eine schnelle Aussage wurde der relative Photonenfluss der ROM-Harmonischen normiert \overline{Q} und in fünf Klassen eingeteilt, siehe Tabelle 5.3. Alle aufgenommenen XUV-Spektren und ihre dazugehörigen Ionenspektren wurden den einzelnen Klassen des ROM-Photonenflusses zugeordnet.

Klasse	\overline{Q}
1	0,0 ... 0,2
2	0,2 ... 0,4
3	0,4 ... 0,6
4	0,6 ... 0,8
5	0,8 ... 1,0

Tab. 5.3.: Einteilung des Photonenfluss der ROM-Harmonischen in fünf Klassen: In Klasse 1 des ROM-Photonenflusses befinden sich alle aufgenommenen XUV-Spektren, deren Photonenfluss der ROM-Harmonischen im Intervall 0,2...0,4 liegt. Für die restlichen Klassen gilt das analog.

Aufgrund der Tatsache, dass die alleinige Betrachtung des Photonenfluss der ROM-Harmonischen nur einen Ausschnitt des XUV-Spektrums berücksichtigt, ist ein Bezug des Flugzeitspektrums zur Gesamtintensität nicht gegeben. Da der Prozess der linearen Ionisation proportional zur Gesamtintensität ist, eignet sich die Ionenausbeute eines linear ionisierten Gases als Maß der Gesamtintensität. Es dient zur Normierung der Ionensignale auf die Gesamtintensität - man spricht folglich vom Intensitätsnormal. Dazu wurden alle gemessenen Ionensignale auf das linear ionisierte und ungesättigte Ionensignal von O_2^+ normiert.

⁵Relativ zum XUV-Hintergrund

5.3. Teil-Experiment 3: Nichtlineare Autokorrelation der ROM-Harmonischen

Für die Messung der nichtlinearen Autokorrelation der ROM-Harmonischen wurden die beiden Hälften des geteilten sphärischen XUV-Spiegels zueinander versetzt, so dass die auftreffenden Pulsreplika einen relativen zeitlichen Versatz erfahren (siehe Kapitel 3). Da es jedoch generell nicht möglich war, die für die nichtlineare Autokorrelation notwendigen He^{2+} -Ionen zu detektieren, wurde stattdessen der Versuch unternommen, eine Autokorrelation mit Xe^{2+} durchzuführen.

Dazu wurde der Piezo-Aktuator (Abschnitt 4.2) in 50 nm Schritten um insgesamt 550 nm verfahren. Pro Schritt entspricht das einem zeitlichen Versatz von 333 as bzw. $0,25 T_{\text{Laser}}$ bezogen auf die Periodendauer des treibenden Lasers. Der maximale Versatz beträgt 2,75 Periodendauern bzw. 3,7 fs.

Da man den Photonenfluss bei jedem Schuss misst, kann man bei einem linearen Anstieg des Photonenflusses auch den Anstieg des Ionensignals untersuchen. Um Abweichungen von linearer Ionisation zu untersuchen, wird das Ionisationssignal verschiedener Photonenflüsse verglichen. Bei linearer Ionisation müsste das Ionisationssignal linear mit der Intensität ansteigen bzw. das auf den Fluss normierte Signal konstant bleiben. Bei nichtlinearer Ionisation müsste das auf den Photonenfluss der ROM-Harmonischen normierte Signal hingegen ansteigen.

5.3.1. Zeitliche spektrale Abhängigkeit der nichtlinearen Ionisation

Für Xenon besteht die Möglichkeit, über die Absorption zweier Photonen direkt vom neutralen Zustand in den zweifach geladenen Zustand Xe^{2+} zu ionisieren. Das gelingt für die Ionisationsenergien $\varepsilon_{\text{Xe} \rightarrow \text{Xe}^+} = 12,1 \text{ eV}$ bzw. $\varepsilon_{\text{Xe}^+ \rightarrow \text{Xe}^{2+}} = 21,2 \text{ eV}$ durch die Absorption zweier Photonen mit einer Photonenenergie $\varepsilon_{\text{ph}} < 33,3 \text{ eV}$. Oder aber die Ionisation erfolgt sequentiell, über die Ionisation von neutralen in den einfach geladenen Zustand Xe^+ und dann in den zweifach geladenen Zustand Xe^{2+} . Die sequentielle Ionisation dominiert dabei unter Umständen den Ionisationsprozess, wie Untersuchung von Neon am FLASH ergaben [66]. Dennoch kann der direkte Ionisationsprozess für Xe^{2+} genutzt werden um eine nichtlineare Autokorrelation durchzuführen [76]. Für Xenon sind die Prozesse der sequentiellen und direkten Doppelionisation schematisch in Abbildung 5.18 dargestellt.

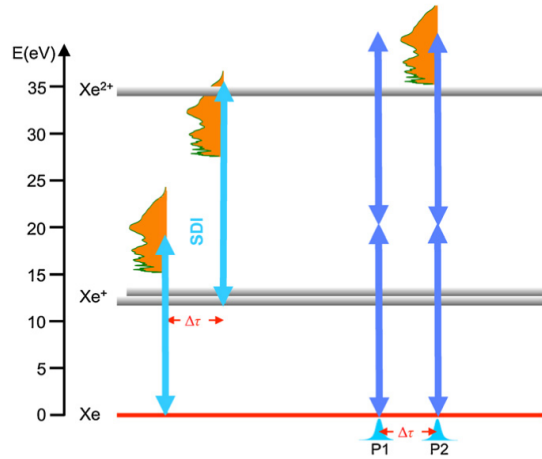


Abb. 5.18.: **Die Xenon-Doppelionisation:** Xenon kann über zwei verschiedene Kanäle zu Xe^{2+} ionisieren. Einerseits sequentiell (links) und andererseits direkt (rechts). Sequentiell führt die Absorption eines Photons zur einfachen Ionisation Xe^+ und zu einem freigewordenen Elektron. Die kinetische Energie des Elektron ist dabei die Differenz aus Photonenenergie und Bindungsenergie des Elektrons. Die Absorption eines zweiten Photons führt zur zweifachen Ionisation und zu einem weiteren freigewordenen Elektron. Im direkten Kanal müssen zeitgleich zwei Photonen absorbiert werden, um den zweifach geladenen Zustand Xe^{2+} zu erreichen. Die Grafik ist Ref. [76] entnommen.

Das Xe^{2+} -Signal ist über den zeitlichen Versatz und für verschiedene Photonenflüsse $Q_1 = 0,1 \equiv 0,0 \dots 0,2$ bis $Q_5 = 0,9 \equiv 0,8 \dots 1,0$, also unterschiedliche Intensitäten der ROM-Harmonischen, in Abbildung 5.19 dargestellt.

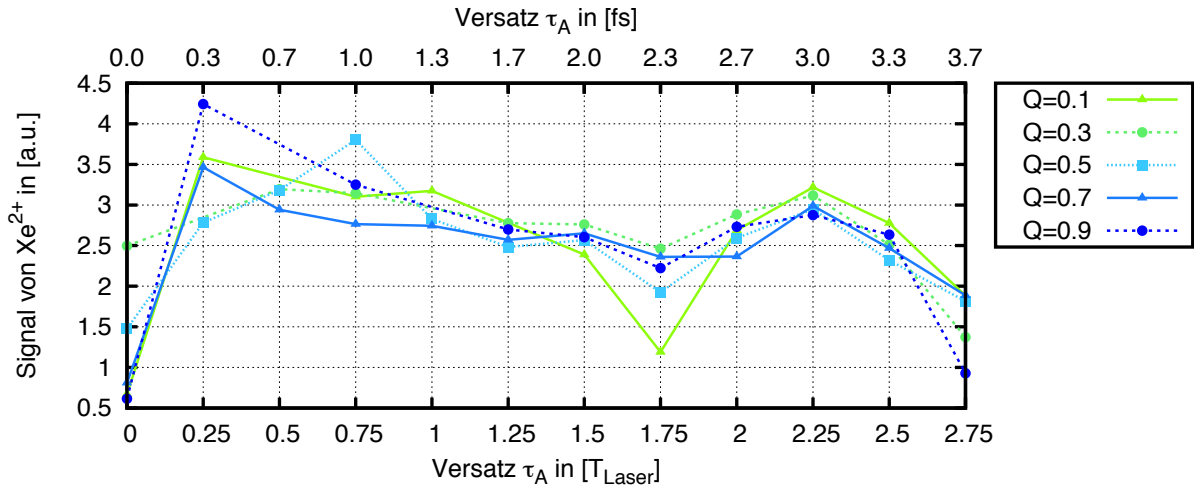


Abb. 5.19.: **Xe^{2+} -Signal über den zeitlichen Versatz für unterschiedliche Stärken der ROM-Harmonischen:** Das Xe^{2+} -Signal zeigt für die Zunahme der ROM-Harmonischen weder einen zunehmenden noch abnehmenden Trend. An drei Stellen des zeitlichen Versatzes, $\tau_A = 0,25 T_{\text{Laser}}$, $\tau_A = 0,75 T_{\text{Laser}}$ und $\tau_A = 1,75 T_{\text{Laser}}$, ist die Variation im Signal besonders. An diesen Positionen lässt sich ebenso kein klarer Trend für die verschiedenen Photonenflüsse erkennen.

Der Signalverlauf zeigt an den Stellen $\tau_A = 0,25 T_{\text{Laser}}$, $\tau_A = 0,75 T_{\text{Laser}}$ und $\tau_A = 1,75 T_{\text{Laser}}$ die stärksten Variationen für unterschiedliche XUV-Photonenflüsse. Durch diese Positionen lässt sich allerdings weder ein tendenzielles Verhalten bei der Zunahme des ROM-Photonenflusses erkennen, noch genügen die Abstände dieser Positionen der Periodizität des Laserpulses. Außerhalb dieser starken Variationen zeigt das Xe^{2+} -Signal ähnliche Werte für die verschiedenen Photonenflüsse. Auch hier ist kein Trend des Xe^{2+} -Signals bei der Zunahme des ROM-Photonenflusses zu erkennen. Der komplette Signalverlauf ist nicht an die Laserperiode gekoppelt. Das bestätigt zum einen die Vermutung, dass Xe^{2+} nicht uneingeschränkt als nichtlineares Medium verwendet werden kann. Außerdem scheint die lineare Ionisation von Xe^{2+} von der Strahlung des Plasmahintergrundes dominiert zu werden. Das wird insbesondere deutlich wenn man die relative spektrale Intensität der Plasmastrahlung von 80 % (allerdings im Außenbereich des Harmonischenstrahls gemessen; siehe Abbildung 5.17) mit den ROM-Harmonischen vergleicht und die längeren Pulsdauern der Plasmastrahlung berücksichtigt.

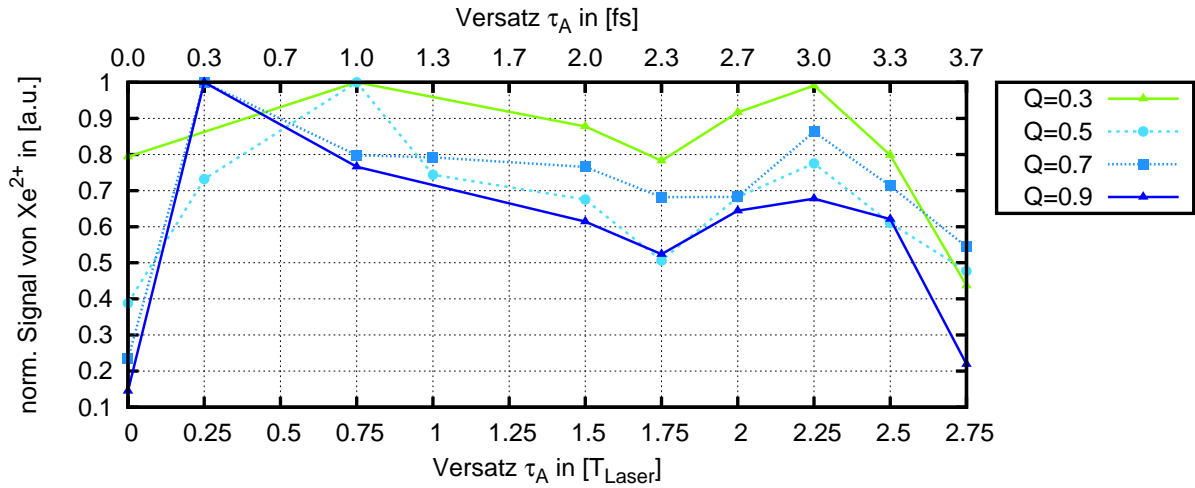


Abb. 5.20.: **Xe^{2+} -Signal über den zeitlichen Versatz bei ausschließlichem Einfluss der ROM-Harmonischen:** Es ist keine Periodizität im Xe^{2+} -Signal zu erkennen. Merkwürdig ist außerdem, dass bei starkem Harmonischensignal ($Q = 0,9$) das Xe^{2+} sogar eher abnimmt. Vermutlich sättigen die Ionisationsfragmente des Restgases die MCP, sodass die Xe^{2+} -Daten nicht für eine quantitative Auswertung zu gebrauchen sind.

Um den alleinigen Einfluss der ROM-Harmonischen auf das Xe^{2+} -Signal zu betrachten, wurden die Daten der niedrigen Photonenflüssen $Q_1 = [0,0 \dots 0,2[$ von denen der hohen normierten Photonenflüssen $Q \geq 0,2$ bzw. starken ROM-Harmonischen abgezogen (Abbildung 5.20). Dabei hat es sich allerdings herausgestellt, dass das Ionensignal für ein stärkeres Harmonischensignal nahezu konstant ist. Dies zeigt, dass Xe^{2+} nicht als nichtlineares Medium dienen kann und die Qualität der experimentellen Daten nicht ausreicht, um eine Autokorrelation der XUV-Pulse durchzuführen.

Vielversprechend wäre eine Autokorrelationsmessung mit Ne^{3+} gewesen, wie sie mit in-

tensiven XUV-Pulsen bereits an FLASH durchgeführt wurde [79]. Leider musste das Experiment bei diesem Versuch abgebrochen werden, da der Laser durch einen Defekt an den Blitzlampen ausgefallen ist.

5.3.2. Zeitliche spektrale Abhängigkeit der linearen Ionisation

Nachdem die höher geladenen Zustände keine signifikante zeitliche Abhängigkeit im Ionensignal zeigen, soll zumindest eine Abhängigkeit für den Prozess der linearen Ionisation untersucht werden. Das betrifft aufgrund der Ionisationsenergien alle einfach geladenen Teilchen im Flugzeitspektrum der Ionen. Zum Vergleich in Abbildung 5.21 sind die Signale der einfach geladenen Ionen und die des Xe^{2+} für zwei verschiedene normierte Photonenflüsse aufgetragen. Im Speziellen werden die Ionensignale für schwache Intensität der ROM-Harmonische ($Q = 0 \dots 0,2$) mit denen starker ROM-Harmonischer ($Q = 0,6 \dots 0,8$, siehe Abbildung 5.22) verglichen.

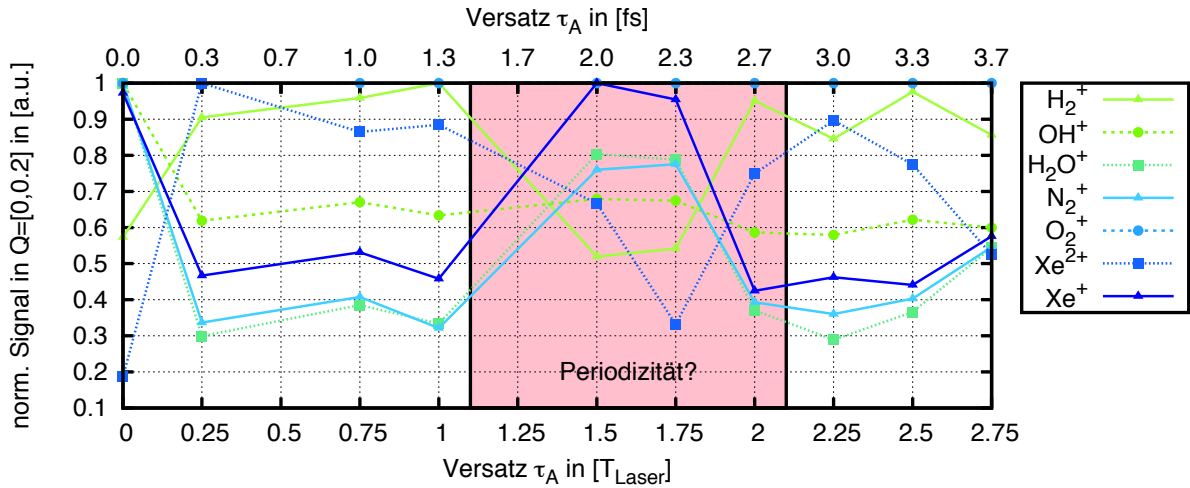


Abb. 5.21.: Ionensignal über den zeitlichen Versatz für schwache ROM-Harmonische ($Q = 0 \dots 0,2$): Das Signal könnte für den zeitlichen Versatz von $\tau_A \approx 1 \dots 2 T_{\text{Laser}}$ eine Periodizität zum treibende Laserpuls zeigen. Die mögliche Periode ist pink markiert. Zusätzlich dazu zeigen Xe^+ und Xe^{2+} sowie H_2O^+ und H_2^+ jeweils einen konträren Verlauf.

Die Ionensignale bei schwacher Intensität der ROM-Harmonischen ($Q = 0 \dots 0,2$) könnten beim zeitlichen Versatz von $\tau_A \approx 1 \dots 2 T_{\text{Laser}}$ eine Periodizität zum treibende Laserpuls zeigen. Daneben sieht man, dass Xe^+ und Xe^{2+} wie auch H_2O^+ und sein Fragment H_2^+ ein gegenläufiges Verhalten aufweisen. Sind die Signale von Xe^+ bzw. H_2O^+ relativ stark, dann sind die Signale von Xe^{2+} bzw. H_2^+ relativ schwach, et vice versa.

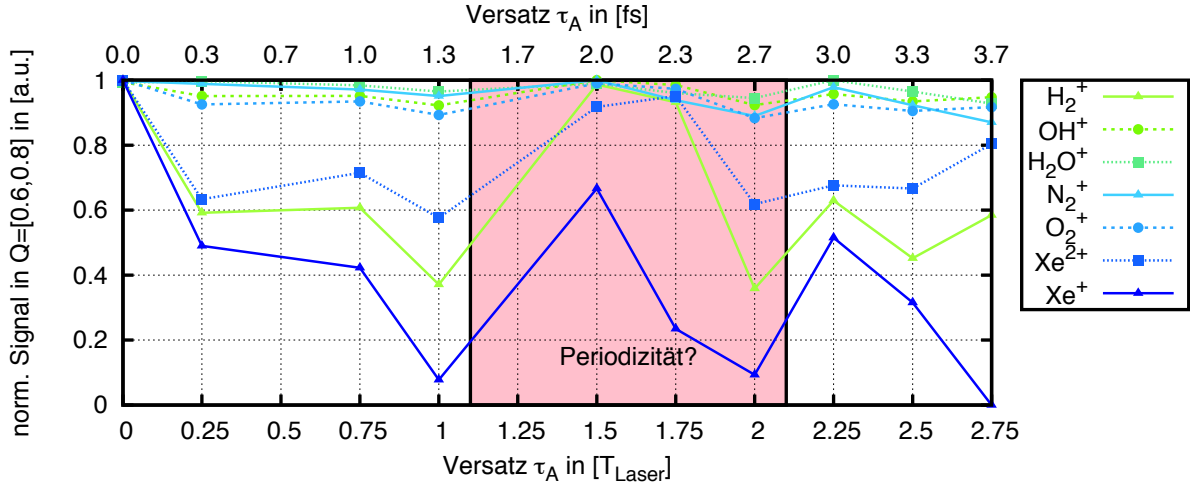


Abb. 5.22.: Ionensignal über den zeitlichen Versatz für starke ROM-Harmonische ($Q = 0,6 \dots 0,8$): Hier zeigen alle Ionen den gleichen Verlauf über den zeitlichen Versatz. Auch diese Daten könnten eine Periodizität zum treibenden Lasers zeigen.

Für stärkere ROM-Harmonische⁶ ($Q = 0,6 \dots 0,8$) zeigt sich, dass alle Ionen den gleichen Verlauf über den zeitlichen Versatz besitzen. Außerdem könnte auch in diesen Daten die Periode des Lasers zu erkennen sein.

⁶Das Signal der schwachen ROM-Harmonischen wurde abgezogen.

6. Zusammenfassung & Ausblick

In dieser Diplomarbeit ist eine Apparatur zur zeitlichen Vermessung von intensiven XUV-Pulsen mit Photonenenergien von 24 bis 40 eV (Abschnitt 4.1) entwickelt worden. Der Aufbau konnte zudem in einer dreiwöchigen Messzeit charakterisiert und getestet werden. Die Apparatur basiert auf einer interferometrischen Autokorrelation von XUV-Pulsen, die aufgeteilt und zeitlich zueinander verschoben werden können. Der zeitliche Versatz der XUV-Pulse wird durch einen geteilten und verfahrbaren sphärischen Spiegel realisiert, der mit Piezo-Aktuatoren einer Verfahrensgenauigkeit von 1 nm [70] bzw. 6,7 as versehen ist (Abschnitt 4.2). Der Spiegel ist von besonders hoher optischer Güte (Formtreue $\lambda/20$) und wird zur Vermeidung von Abbildungsfehlern unter senkrechten Einfall verwendet. Die Fokusfläche erreicht für 800 nm mit $A \approx 2,8 \mu\text{m}$ die Beugungsbegrenzung (Abschnitt 4.1), sodass die XUV-Pulse auf höchste Intensitäten fokussiert werden können. Abbildungsbedingt zeigt ein sphärischer Spiegel, im Gegensatz zu Toroiden mit ungleichen optischen Laufwegen, außerdem keine (intrinsische) zeitliche Verbreiterung des einfallenden Pulse. Um eine hohe Reflektivität des Spiegels bei senkrechtem Einfall zu gewährleisten, ist der Spiegel mit einem breitbandigen Multi-Layer-Schichtsystem versehen worden. Das Schichtsystem besitzt eine Reflektivität von 10% für Photonen im Bereich von 24 bis 40 eV (Abschnitt 4.1).

Die spektrale Trennung der ROM- von den CWE-Harmonischen wird mit Fotolack-beschichteten Glastargets realisiert. Sie erlauben infolge ihrer geringen Elektronendichte im Plasmazustand die Absenkung der Cut-Off-Frequenz der CWE-Harmonischen. Durch die Kombination mit einem Aluminium-Transmissionsfilter ($\propto 200 \text{ nm}$) lassen sich außerdem die hoch-energetischen ROM-Harmonischen von CWE-Harmonischen trennen (Abschnitt 4.3, Unterabschnitt 5.2.2). Die Überprüfung kann mit einem neu entwickelten reflektiven XUV-Spektrometer erfolgen (Abschnitt 4.4, Unterabschnitt 5.2.2). Dispersionsbedingt wird der XUV-Puls durch den Transmissionsfilter und dem breitbandigen Multilayer-Spiegel auf das Doppelte gestreckt. Das würde einer Streckung eines 150 as-Pulses auf unter 300 as entsprechen (Abschnitt 4.3). Damit könnte man Attosekundenpulse durch den ROM Mechanismus messen, die immer noch um einen Faktor drei kürzer als die CWE-Harmonischen sind.

In der Messzeit wurden erstmals Ionisationsexperimente mit intensiven XUV-Pulsen durchgeführt, die durch den ROM-Prozess erzeugt wurden (Unterabschnitt 5.2.2). Dazu wurden die XUV-Pulse in ein Gas fokussiert und die dazugehörigen Flugzeitspektren der

Ionen- und Elektronen mit einer MCP aufgenommen. Es wurden dazu die Gase Helium, Neon und Xenon verwendet. Der höchste gemessene Ladungszustand war Xe^{2+} . Bei den abgeschätzten Intensitäten von $I_{\text{ROM}} \approx 10^{14} \text{ W/cm}^2$ hätte man allerdings deutliche höhere Ionisationszustände erwarten können [66]. Ein nichtlineares Signal - eine Voraussetzung für eine nichtlineare Autokorrelation zur zeitlichen Charakterisierung von Pulsen - konnte deshalb nicht in erforderlichem Maße gemessen werden.

Für den Versuch der nichtlinearen Autokorrelation (Abschnitt 5.3) von Helium fehlte das nichtlineare Signal von He^{2+} , welches sich mit dem des H^+ -Ions überlagert. Deshalb wurde versucht die Autokorrelation an zweifach geladenen Xenon Xe^{2+} durchzuführen. Da Xe^{2+} im Fall direkter Ionisation ein 2-Photonenprozess und damit auch ein nichtlinearer Prozess ist, wurde die Nichtlinearität dieses Signals für unterschiedliche Photonenflüsse untersucht. Es hat sich jedoch herausgestellt, dass das Xe^{2+} Ionensignal linear vom angewendeten Photonenfluss abhängt und somit nicht als nichtlineares Medium eingesetzt werden kann. Es ist deshalb davon auszugehen, dass die lineare bzw. sequentielle Ionisation von Xe^{2+} dominiert.

Ein experimenteller Test der Autokorrelation wurde dennoch versucht. Leider zeigt Xe^{2+} keinerlei Abhängigkeit vom zeitlichen Versatz. Weitere Versuche endeten mit einem Defekt im Pumplasersystem. Daneben zeigen die Signale der einfach geladenen Ionen jedoch eine schwache Abhängigkeit vom zeitlichen Versatz. Innerhalb dieser Messdaten könnte man sogar eine Periodizität des Laserfeldes interpretieren.

Folgende Probleme bei der Messung hoher Ladungszustände und somit von einem nichtlinearen Ionisationssignal wurden erkannt und müssen bei zukünftigen Experimenten behoben werden:

Lage des Fokus Es ist erforderlich, den XUV-Fokus zur differentiellen Blende des Spektrometers perfekt auszurichten. Leider stand eine stabile Quelle intensiver Attosekundenpulse z.B. durch die Erzeugung von Gasharmonischen zum Zeitpunkt der Messung noch nicht zur Verfügung, mit der die Justage hätte erfolgen können.

hoher Hintergrunddruck ($\propto 10^{-5} \text{ mbar}$) Mit der Verringerung des Hintergrunddrucks könnte man ein Übersteuern des MCP-Detektors durch die Ionen des Restgases vermeiden. Damit könnten wesentlich höhere Spannungswerte an der MCP verwendet werden, sodass der Detektor wesentlich sensitiver auf das (nichtlineare) Ionensignal wäre.

hohe Gaszufuhr Durch den verminderten Hintergrunddruck könnte man außerdem den Gasdruck der Düse verringern, was zu einer geringeren Absorption des einfallenden XUV-Pulses durch einströmendes Gas führen würde.

ROM-Effizienz Die ROM-Harmonischen könnten stabiler und vor allem effizienter (z.B.

mit optimierter Plasmaskalenlänge) erzeugt werden, sodass die Attosekundenpulszüge intensiver sind. Dann sollte man ein nichtlineares Signal detektieren können, mit dem sich die Autokorrelationsmessung durchführen ließe.

Obwohl die nichtlineare Autokorrelation für ROM-Harmonischen nicht durchgeführt werden konnte, wurden dennoch wichtige Erfahrungen mit dem Umgang intensiver Attosekundenpulse und deren Einsatz in Ionisationsexperimenten gesammelt. Außerdem sind bereits für künftige Experimente die notwendigen Auswerteroutinen vorhanden. Die Probleme, die eine nichtlineare Autokorrelation bisher verhindert haben, wurden erkannt und Lösungen beschrieben. Nach einer Verbesserung der Apparatur insbesondere der Vakuumbedingungen empfiehlt es sich jedoch, die nichtlineare Autokorrelation zunächst an einer stabilen XUV-Quelle, wie die intensiven Gasharmonischen, ausgiebig zu testen [76].

7. Danksagung

Für die Möglichkeit, an einem so ambitionierten Projekt wie der zeitlichen Charakterisierung der ROM-Harmonischen arbeiten zu können und für das in mich gesteckte Vertrauen, danke ich Herrn Prof. Paulus außerordentlich.

Prof. Förster danke ich für die Übernahme der Aufgabe meines Zweitgutachters und für die Betreuung an den Experimenten mit Synchrotron-Strahlung.

Ich bin Christian Rödel als aufopferungsvoller und engagierter Betreuer zu außerordentlichen Dank verpflichtet. Er war maßgeblich an der Umsetzung dieses Projektes beteiligt. Ich habe meinem Studienkollegen Silvio Fuchs für die immerwährende Bereitschaft zu helfen als auch für seine stets klugen Einwürfe sehr viel zu verdanken.

Wolfgang Ziegler als leitenden Ingenieur des Instituts danke ich für sein Engagement bei der aufwändigen Konstruktion und Realisierung des Experimentes.

Meiner Arbeitsgruppe möchte ich meinen Dank ausdrücken für die Hilfe bei der Messung und dem stets angenehmen Beisammensein zu Mittagstisch.

Meinen Freunden danke ich dafür, dass sie stets an guten als auch schlechten Tagen für mich da waren und mir viel Kraft gegeben und Freude gebracht haben.

Meinen Eltern möchte ich danken für all die Unterstützung, die sie mir während meines Studiums entgegen gebracht haben.

Anhang

A. Formeln

Fourier-Transformation

Die Fourier-Transformierte $\mathcal{F}(\omega)$ einer zeitabhängigen Verteilung $F(t)$ lautet:

$$\mathcal{F}(\omega) \equiv \text{FT}[F(t)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} F(t) \exp(i\omega t) dt \quad (\text{A.1})$$

Die Rücktransformation der Fourier-Transformierten Verteilung ist definiert als:

$$F(t) \equiv \text{FT}^{-1}[\mathcal{F}(\omega)] = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{F}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \quad (\text{A.2})$$

Faltung

Die Faltung zweier Funktionen $F(t)$ und $G(t)$ ist definiert als:

$$(F * G)(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} dt F(t) \cdot G(t - \tau) \quad (\text{A.3})$$

Faltungstheorem

Für die Fourier-Transformation einer Faltung im \mathbb{R}^1 gilt:

$$\text{FT}[(F * G)(\tau)] = \sqrt{2\pi} \text{FT}[F(t)] \cdot \text{FT}[G(t)] \quad (\text{A.4})$$

Gauß-Integral

Die Lösung des Gauß-Integrals lautet:

$$\int_{-\infty}^{\infty} a \exp(-b(x + c)^2) dx = a \sqrt{\frac{\pi}{b}} \quad (\text{A.5})$$

Parseval Theorem

Das Integral über der Leistung eines Signals $|f(t)|^2$ entspricht dem Integral der spektralen Energiedichte $|F(\omega)|^2$:

$$\int_{-\infty}^{\infty} |f(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{\infty} |F(\omega)|^2 d\omega \quad (\text{A.6})$$

Beide Funktionen sind dabei über der Fourier-Transformation mit einander verbunden:
 $F(\omega) = \text{FT}[f(t)]$.

Statistische Optik

Die Intensität als zeitliche Mittellung über den Betrag des Poynting-Vektors $\mathbf{S}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$ ist im dispersiven Medium mit dem Brechungsindex n [64]:

$$I(\mathbf{r}, t) = \langle |\mathbf{S}(\mathbf{r}, t)| \rangle = \frac{n\epsilon_0 c}{2} \langle |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2 \rangle = \frac{n\epsilon_0 c}{2} \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2 dt \quad (\text{A.7})$$

Für die spektrale Intensität als Fourier-Transformierte der zeitlichen Intensität gilt:

$$S(\omega) = \text{FT}[I(\mathbf{r}, t)] = \frac{n\epsilon_0 c}{2} \langle \text{FT}[|\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2] \rangle = \frac{n\epsilon_0 c}{2} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2 \exp(i\omega t) dt \quad (\text{A.8})$$

B. Berechnungen

Pulsverbreiterung bei einer gechirpten spektralen Phase

Fourier-limitierte Pulsdauer

Mit einer Gaußförmigen spektralen Verteilung

$$\mathcal{E}(\omega) = \mathcal{E}_0 \exp\left(-4 \ln 2 \frac{(\omega - \omega_0)^2}{\Delta\omega^2}\right) \quad (\text{B.1})$$

und einer zunächst glatten spektralen Phase $\varphi(\omega) = 0$ ergibt die (inverse) Fourier-Transformation die zeitliche Feldverteilung des Pulses:

$$\text{FT}^{-1}[\mathcal{E}(\omega)] = E(t) = \underbrace{\mathcal{E}_0 \frac{\Delta\omega}{\sqrt{8 \ln 2}}}_{\equiv E_0} \underbrace{\exp\left(-\frac{t^2 \Delta\omega^2}{16 \ln 2}\right)}_{\text{Einhüllende}} \exp(-i\omega_0 t) \quad (\text{B.2})$$

Insbesondere lässt sich aus der Einhüllenden die (Fourier-limitierte) Pulsdauer der Feldverteilung τ_{E0} bestimmen:

$$\exp\left(-\frac{t^2 \Delta\omega^2}{16 \ln 2}\right) \equiv \exp\left(-4 \ln 2 \frac{t^2}{\tau_{E0}^2}\right) \quad (\text{B.3})$$

Es folgt für die Pulsdauer

$$\tau_{E0} = \frac{8 \ln 2}{\Delta\omega} \equiv \tau_C \quad (\text{B.4})$$

der Zusammenhang zwischen spektraler Breite $\Delta\omega$ und der (Fourier-limitierten) Pulsdauer τ_{E0} bzw. Kohärenzzeit τ_C .

Verbreiterte Pulsdauer

Besitzt das Gaußförmige Spektrum eine gechirpte spektrale Phase ($\text{GDD} \neq 0$) mit $\varphi(\omega) = \frac{1}{2}\text{GDD}(\omega - \omega_0)^2$, dann führt das zu einer veränderten Feldverteilung, wie die (inverse) Fourier-Transformation zeigt:

$$\begin{aligned} \text{FT}^{-1}[\mathcal{E}(\omega)] = E(t) &= \underbrace{\frac{\mathcal{E}_0}{\sqrt{2a - i \cdot \text{GDD}}}}_{\equiv E_0} \exp\left(-\frac{t^2 + 4ia\omega_0 \cdot t + 2\omega_0 \text{GDD} \cdot t}{4a - 2i \cdot \text{GDD}}\right) \\ &= E_0 \underbrace{\exp\left(-\frac{a \cdot t^2}{4a^2 + \text{GDD}^2}\right)}_{\text{Einhüllende}} \underbrace{\exp\left(-i \frac{\frac{1}{2}\text{GDD} \cdot t^2 + 4a^2\omega_0 \cdot t + \omega_0 \text{GDD}^2 \cdot t}{4a^2 + \text{GDD}^2}\right)}_{\text{Phasenterm}} \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

Dabei wurde die Ersetzung $a = 4 \ln 2 / \Delta\omega^2$ vorgenommen. Die veränderte Einhüllende

$$\exp\left(-\frac{a \cdot t^2}{4a^2 + \text{GDD}^2}\right) \equiv \exp\left(-4 \ln 2 \frac{t^2}{\tau_E^2}\right) \quad (\text{B.6})$$

führt zu einer verbreiterten Pulsdauer von:

$$\tau_E = \tau_{E0} \sqrt{1 + \left(16 \ln 2 \frac{\text{GDD}}{\tau_{E0}^2}\right)^2} \quad (\text{B.7})$$

Für die Betrachtung der Intensitätsverteilung mit der Pulsdauer $\tau_I = \tau_E / \sqrt{2}$ bzw. $\tau_{I0} = \tau_{E0} / \sqrt{2}$ folgt schließlich:

$$\tau_I = \tau_{I0} \sqrt{1 + \left(4 \ln 2 \frac{\text{GDD}}{\tau_{I0}^2}\right)^2} \quad (\text{B.8})$$

Herleitung: Interferometrische Autokorrelation 2.Ordnung

$$\begin{aligned}
\mathfrak{S}_2(\tau) &\propto \int_{-\infty}^{\infty} dt |\mathbf{E}_A + \mathbf{E}_B|^4 = \int_{-\infty}^{\infty} dt |\mathbf{E}_A + \mathbf{E}_B|^2 |\mathbf{E}_A + \mathbf{E}_B|^2 \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} dt \Re\{(\mathbf{E}_A^* + \mathbf{E}_B^*)(\mathbf{E}_A + \mathbf{E}_B)\} \Re\{(\mathbf{E}_A^* + \mathbf{E}_B^*)(\mathbf{E}_A + \mathbf{E}_B)\} \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[\Re\{(\mathbf{E}_A^* + \mathbf{E}_B^*)(\mathbf{E}_A + \mathbf{E}_B)\} \right]^2 \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[\Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_A\} + \Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\} + \Re\{\mathbf{E}_B^* \mathbf{E}_A\} + \Re\{\mathbf{E}_B^* \mathbf{E}_B\} \right]^2 \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[|\mathbf{E}_A|^2 + \Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\} + \Re\{\mathbf{E}_B^* \mathbf{E}_A\} + |\mathbf{E}_B|^2 \right]^2 \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[\{|\mathbf{E}_A|^2\}^2 + \{|\mathbf{E}_B|^2\}^2 + 2|\mathbf{E}_A|^2 |\mathbf{E}_B|^2 \right. \\
&\quad + \Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\}^2 + \Re\{\mathbf{E}_B^* \mathbf{E}_A\}^2 + 2\Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\} \Re\{\mathbf{E}_B^* \mathbf{E}_A\} \\
&\quad + 2|\mathbf{E}_A|^2 \Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\} + 2|\mathbf{E}_A|^2 \Re\{\mathbf{E}_B^* \mathbf{E}_A\} \\
&\quad \left. + 2|\mathbf{E}_B|^2 \Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\} + 2|\mathbf{E}_B|^2 \Re\{\mathbf{E}_B^* \mathbf{E}_A\} \right]
\end{aligned} \tag{B.9}$$

Mit der Gleichheit von $\Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\} = \Re\{\mathbf{E}_B^* \mathbf{E}_A\}$ folgt:

$$\begin{aligned}
\mathfrak{S}_2(\tau) &\propto \int_{-\infty}^{\infty} dt |\mathbf{E}_A + \mathbf{E}_B|^4 \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[\{|\mathbf{E}_A|^2\}^2 + \{|\mathbf{E}_B|^2\}^2 \right. \\
&\quad + 2|\mathbf{E}_A|^2 |\mathbf{E}_B|^2 + 4\Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\}^2 \\
&\quad \left. + 4|\mathbf{E}_A|^2 \Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\} + 4|\mathbf{E}_B|^2 \Re\{\mathbf{E}_A^* \mathbf{E}_B\} \right]
\end{aligned} \tag{B.10}$$

Intensitätsabschätzung

Bestimmung der Intensität aus Messgrößen

Zur Bestimmung der Intensität wird die Kenntnis der Pulsenergie, der Pulsdauer und der Fokusfläche vorausgesetzt. Die Pulsenergie $\varepsilon_P = P_M / f_{\text{rep}}$ lässt sich die aus der Durchschnittsleistung P_M und der Repititionsrate f_{rep} des Lasers bestimmen. Der Fokusbereich $2w_0$ bestimmt sich bei der Fokussierung eines Gauß-Strahls des Durchmessers D mit der Brennweite f zu

$$2w_0 = 4/\pi \cdot \lambda \frac{f}{D} \quad . \tag{B.11}$$

Ist die Pulsdauer τ bekannt, ergibt sich die Pulsleistung P_P für Gaußförmige Pulse zu

$$P_P = \sqrt{\ln 2/\pi} \frac{2\varepsilon_P}{\tau} \tag{B.12}$$

Die Intensität ist folglich:

$$I_0 = \frac{P_P}{A} = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\pi\sqrt{\pi}} \frac{P_M}{f_{\text{rep}}\tau w_0^2} \quad (\text{B.13})$$

ROM-Harmonischen-Intensität in der Fokalebene der Sphäre

Für die Abschätzung werden nur die Harmonischen oberhalb der Absorptionskante des Aluminiumtransmissionsfilter bei 20 eV betrachtet. Eine einzelne Harmonische besitzt Energien $\varepsilon_{\text{Harm}} \leq 0,03 \mu\text{J}$ [9]. Das Spektrum erstreckt sich aufgrund der Reflektivität der Sphäre bis ca. 45 eV. In diesem Bereich liegen die Harmonischen von der 7-ten bis 14-ten Ordnung von der Fundamentalen bei 400 nm - das entspricht 8 Harmonischen. Die Gesamtenergie im Spektrum beträgt daher $\varepsilon \approx 0,24 \mu\text{J}$.

Erzeugt werden sie in jedem optischen Zyklus $\Delta t = 1,35 \text{ fs}$ des treibenden Laserpulses bei 400 nm mit einer Pulsdauer von $\tau_{400} = 30 \text{ fs}$. Das entspricht ca. 20 Zyklen. Die angenommene XUV-Pulsdauer von $\tau_{\text{XUV}} = 100 \text{ as}$ verbreitert sich durch den Chirp vom Transmissionsfilter und der Multi-Layer-Sphäre maximal zu $\tau_{\text{Chirp}} \approx 230 \text{ as}$. Die Gesamtdauer aller XUV-Pulse ist gemittelt $\tau_{\text{Mean}} = 4 \text{ fs}$.

Da die Fokusgröße des sphärischen Spiegels für 800 nm bei $A = 2,8 \mu\text{m}^2$ liegt, kann angenommen werden, dass die Fokusfläche der ROM-Harmonischen genau oder kleiner ist. Die Intensität ergibt sich daher zu:

$$I_{\text{ROM}} = \frac{\varepsilon}{\tau A} \approx 2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2 \quad (\text{B.14})$$

Unter Berücksichtigung der Transmission $T = 0,6$ des Aluminiumfilters und der Reflektivität des Breitband-Multi-Layer-Spiegels $R = 0,12$ reduziert sich die Fokusintensität zu:

$$I_{\text{ROM}} \approx 1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2 \quad (\text{B.15})$$

Abbildungsverzeichnis

1.1. Schematische Skizze des experimentellen Aufbaus zur zeitlichen Charakterisierung der ROM-Harmonischen mit einer nichtlinearen Autokorrelation	2
2.1. Der Einfluss des Chirps auf den Puls	5
2.2. CE-Phase Erklärung	6
2.3. Einfluss der GDD auf die Attosekunden-Pulsdauer	7
2.4. Keldysh-Parameter Kurve	10
2.5. Reflexion von Laserlicht an einem Plasmaprofil	15
2.6. Elektronenbewegung im relativistischen Fall	16
2.7. Prinzip des 'Relativistic Oscillating Mirror'	17
2.8. Seitband-Emission der Oberflächenharmonischen bei niederlichten Targets $n_{e,0} = 40 n_c$	18
3.1. Prinzipskizze der nichtlineare Autokorrelation	21
3.2. Prinzipskizze des interferometrischen Autokorrelators 1.Ordnung	22
3.3. Bsp. eines Signal für einen lin. Autokorrelator	25
3.4. Prinzipskizze eines interferometrischen Autokorrelators 2.Ordnung	26
3.5. Darstellung der Pupillenebene zur Fokusebene	28
3.6. Simulation der Doppelionisation für die Mode $N = 28$	30
3.7. Simulation der nichtlinearen Autokorrelationsspur von Attosekundenpul- zügen	31
3.8. Nichtlineare Autokorrelation mithilfe von Helium	32
4.1. Prinzipskizze von Multi-Layer-Schichtsystemen	36
4.2. Intensitätsverteilung des 800 nm-Pulses in der Fokalebene des sphärischen XUV-Spiegels	38
4.3. Reflexion und Spektrale Phase des optimierten Multi-Layers für 30 bis 45 eV	38
4.4. Blick auf den zwei-geteilten sphärischen Spiegel	40
4.5. Transmissionsfilter Aluminium	42
4.6. Winkel- und energieabhängige Reflektivitäten verschiedener Materialien .	44
4.7. 3D-Ansicht des mit ZEMAX konstruierten Flat-Field-Spektrometers . . .	45
4.8. Entwurf des nichtlinearen Autokorrelators in der Draufsicht	46

5.1. Piktogramm des Autokorrelation-Experimentes	47
5.2. Aufbau zur Erzeugung der Oberflächenharmonischen in der Draufsicht .	49
5.3. Blick in die Experimentierkammer zur Erzeugung der Oberflächenharmonischen	50
5.4. Intensitätsverteilung des 400 nm-Pulses in der Fokalebene	51
5.5. Detektorbild des XUV-Spektrometers bei der Erzeugung der ROM-Harmonischen	51
5.6. Blick in die Experimentierkammer zur Autokorrelation der ROM-Harmonischen	52
5.7. Verlauf der Laserpuls-Einhüllenden	53
5.8. Sphärenfokusfläche im feinen Verfahren und der Ausbildung des Doppelfokus	54
5.9. Intensitätsverteilung bei Versatz der Spiegelhälften	55
5.10. Prinzipskizze des TOF-Spektrometers	56
5.11. Beispiel eines Ionen-Flugzeitspektrums bei der Zufuhr von Xenon	57
5.12. Ionen-Flugzeitspektrum bei der Zufuhr von Helium	58
5.13. Ionen-Flugzeitspektrum bei der Zufuhr von Neon	59
5.14. Sättigung des Flugzeitspektrums	60
5.15. Verschmierung des Flugzeitspektrums	61
5.16. Integrationsintervalle des Flugzeitspektrums	62
5.17. Line-Out eines ROM-Harmonischenspektrums für niedrige Harmonischenordnungen	62
5.18. Die Xenon-Doppelionisation	65
5.19. Xe^{2+} -Signal über den zeitlichen Versatz für unterschiedliche Stärken der ROM-Harmonischen	65
5.20. Xe^{2+} -Signal über den zeitlichen Versatz bei ausschließlichem Einfluss der ROM-Harmonischen	66
5.21. Ionensignal über den zeitlichen Versatz für schwache ROM-Harmonische ($Q = 0 \dots 0,2$)	67
5.22. Ionensignal über den zeitlichen Versatz für starke ROM-Harmonische ($Q = 0,6 \dots 0,8$)	68

Tabellenverzeichnis

2.1. Wichtige Parameter der Starkfeldlaserphysik im XUV-Bereich	11
2.2. Vgl. von CWE und ROM-Harmonischen bei <i>JETI</i> -Parametern	19
3.1. Ionisationspotential einiger Elemente für die ersten fünf Ladungszuständen	31
4.1. Die Eigenschaften des sphärischen Spiegels unter senkrechtem Einfall . .	37
4.2. Die Eigenschaften der B ₄ C-Umlenkspiegel	45
5.1. Die häufigsten Xenon-Isotope und ihre Flugzeiten	58
5.2. Beispielhafte berechnete Ionenmassen mit dem Proportionalitätsfaktor \mathfrak{K}	60
5.3. Einteilung des Photonenfluss der ROM-Harmonischen in fünf Klassen . .	63

Literaturverzeichnis

- [1] W. ACKERMANN, G. ASOVA, V. AYVAZIAN, AND ET AL., *Operation of a free-electron laser from the extreme ultraviolet to the water window*, Nature Photonics, 1 (2007), pp. 336–342.
- [2] P. AGOSTINI, F. FABRE, G. MAINFRAY, G. PETITE, AND N. K. RAHMAN, *Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms*, Phys. Rev. Lett., 42 (1979), pp. 1127–1130.
- [3] M. V. AMMOISOV, N. B. DELONE, AND V. P. KRAINOV, *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 81 (1986), pp. 2008–2013.
- [4] D. AN DER BRÜGGE, N. KUMAR, A. PUKHOV, AND C. RÖDEL, *Influence of surface waves on plasma high-order harmonic generation*, Phys. Rev. Lett., 108 (2012), p. 125002.
- [5] T. BAEVA, S. GORDIENKO, AND A. PUKHOV, *Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma*, Phys. Rev. E, 74 (2006), p. 046404.
- [6] M. BEHMKE, D. AN DER BRÜGGE, C. RÖDEL, M. CERCHEZ, D. HEMMERS, M. HEYER, O. JÄCKEL, M. KÜBEL, G. G. PAULUS, G. PRETZLER, A. PUKHOV, M. TONCIAN, T. TONCIAN, AND O. WILLI, *Controlling the spacing of attosecond pulse trains from relativistic surface plasmas*, Phys. Rev. Lett., 106 (2011), p. 185002.
- [7] J. BERKOWITZ, *Atomic and Molecular Photoabsorption: Absolute Total Cross Sections*, Elsevier Ltd., 2002.
- [8] J. BIERBACH, *Hohe Harmonische Strahlung von relativistischen Plasmaoberflächen zur Erzeugung von Attosekundenpulsen*, Master’s thesis, Friedrich-Schiller-Universität, 2012.
- [9] J. BIERBACH, C. RÖDEL, M. YEUNG, B. DROMEY, T. HAHN, A. G. POUR, S. FUCHS, A. E. PAZ, S. HERZER, S. KUSCHEL, O. JÄCKEL, M. C. KALUZA, G. PRETZLER, M. ZEPF, AND G. G. PAULUS, *Generation of 10 μ W relativistic*

- surface high-harmonic radiation at a repetition rate of 10 Hz*, New Journal of Physics, 14 (2012), p. 065005.
- [10] C. BOURASSIN-BOUCHET, Z. DIVEKI, S. DE ROSSI, E. ENGLISH, E. MELTCHAKOV, O. GOBERT, D. GUÉNOT, B. CARRÉ, F. DELMOTTE, P. SALIÈRES, AND T. RUCHON, *Control of the attosecond synchronization of xuv radiation with phase-optimized mirrors*, Opt. Express, 19 (2011), pp. 3809–3817.
 - [11] P. CORKUM AND F. KRAUSZ, *Attosecond science*, Nat Phys, 3 (2007), pp. 381–387.
 - [12] P. B. CORKUM, *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*, Phys. Rev. Lett., 71 (1993), pp. 1994–1997.
 - [13] N. B. DELONE AND V. P. KRAINOV, eds., *Multiphoton Processes in Atoms*, Springer, Berlin, first ed., 1994.
 - [14] B. DROMEY, D. ADAMS, R. HÖRLEIN, Y. NOMURA, S. G. RYKOVANOV, D. C. CARROLL, P. S. FOSTER, S. KAR, K. MARKEY, P. MCKENNA, D. NEELY, M. GEISLER, G. D. TSAKIRIS, AND M. ZEPF, *Diffraction-limited performance and focusing of high harmonics from relativistic plasmas*, Nature Physics, 5 (2009), p. 025034.
 - [15] B. DROMEY, S. KAR, C. BELLEI, D. C. CARROLL, R. J. CLARKE, J. S. GREEN, S. KNEIP, K. MARKEY, S. R. NAGEL, P. T. SIMPSON, L. WILLINGALE, P. MCKENNA, D. NEELY, Z. NAJMUDIN, K. KRUSHELNICK, P. A. NORREYS, AND M. ZEPF, *Bright multi-keV harmonic generation from relativistically oscillating plasma surfaces*, Phys. Rev. Lett., 99 (2007), p. 085001.
 - [16] B. DROMEY, M. ZEPF, A. GOPAL, K. LANCASTER, M. S. WEI, K. KRUSHELNICK, M. TATARAKIS, N. VAKAKIS, S. MOUSTAIZIS, R. KODAMA, M. TAMPO, C. STOECKL, R. CLARKE, H. HABARA, D. NEELY, S. KARSCH, AND P. NORREYS, *High harmonic generation in the relativistic limit*, Nature Physics, 2 (2006), pp. 456–459.
 - [17] A. EINSTEIN, *Über einen die erzeugung und verwandlung des lichtes betreffenden heuristischen gesichtspunkt*, Annalen der Physik, 322 (1905), pp. 132–148.
 - [18] P. EMMA, R. AKRE, J. ARTHUR, R. BIONTA, C. BOSTEDT, J. BOZEK, A. BRACHMANN, P. BUCKSBAUM, R. COFFEE, F. J. DECKER, Y. DING, D. DOWELL, S. EDSTROM, A. FISHER, J. FRISCH, S. GILEVICH, J. HASTINGS, G. HAYS, HERINGPH, Z. HUANG, R. IVERSON, H. LOOS, M. MESSERSCHMIDT, A. MI-AHNAHRI, S. MOELLER, H. D. NUHN, G. PILE, D. RATNER, J. RZEPIELA,

- D. SCHULTZ, T. SMITH, P. STEFAN, H. TOMPKINS, J. TURNER, J. WELCH, W. WHITE, J. WU, G. YOCKY, AND J. GALAYDA, *First lasing and operation of an angstrom-wavelength free-electron laser*, Nature Photonics, 4 (2010), pp. 641–647.
- [19] F. FABRE, G. PETITE, P. AGOSTINI, AND M. CLEMENT, *Multiphoton above-threshold ionisation of xenon at 0.53 and 1.06 μm* , Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 15 (1982), p. 1353.
- [20] F. H. M. FAISAL, *Multiple absorption of laser photons by atoms*, Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 6 (1973), p. L89.
- [21] D. FITTINGHOFF, J. BOWIE, J. SWEETSER, R. JENNINGS, M. KRUMBUGEL, K. DELONG, R. TREBINO, AND I. WALMSLEY, *Measurement of the intensity and phase of ultraweak, ultrashort laser pulses*, OPTICS LETTERS, 21 (1996), pp. 884–886.
- [22] S. FUCHS, C. RÖDEL, M. KREBS, S. HÄDRICH, J. BIERBACH, A. PAZ, S. KUSCHEL, M. WÜNSCHE, V. HILBERT, U. ZASTRAU, E. FÖRSTER, J. LIMPET, AND G. G. PAULUS, *Sensitivity calibration of an imaging XUV spectrometer-detector system for determining the efficiency of broadband XUV sources*, Rev. Sci. Instrum., (2012). submitted.
- [23] K. FURUSAWA, T. OKINO, T. SHIMIZU, H. HASEGAWA, Y. NABEKAWA, K. YAMANOUCHI, AND K. MIDORIKAWA, *Photoelectron spectroscopy of two-photon ionisation of rare-gas atoms by multiple high order harmonics*, Applied Physics B: Lasers and Optics, 83 (2006), pp. 203–211. 10.1007/s00340-006-2148-7.
- [24] A. GALESTIAN POUR, *Relativistic Surface High Harmonic Generation using Frequency Doubled Terawatt Femtosecond Laser Pulses*, Master’s thesis, Friedrich-Schiller-Universität, 2012.
- [25] P. GIBBON, *Short Pulse Laser Interactions with Matter*, Imperial College Press, London, 2005.
- [26] E. GOULIELMAKIS, M. SCHULTZE, M. HOFSTETTER, V. S. YAKOVLEV, J. GAGNON, M. UIBERACKER, A. L. AQUILA, E. M. GULLIKSON, D. T. ATTWOOD, R. KIENBERGER, F. KRAUSZ, AND U. KLEINEBERG, *Single-cycle nonlinear optics*, Science, 320 (2008), pp. 1614–1617.
- [27] E. GOULIELMAKIS, M. UIBERACKER, R. KIENBERGER, A. BALTUSKA, V. YAKOVLEV, A. SCRINZI, T. WESTERWALBESLOH, U. KLEINEBERG, U. HEINZMANN, M. DRESCHER, AND F. KRAUSZ, *Direct measurement of light waves*, Science, 305 (2004), pp. 1267–1269.

-
- [28] B. HEINEMANN, R. BARTH, D. BOLZE, J. DREWS, G. FISCHER, A. FOX, O. FURSENKO, T. GRABOLLA, U. HAAK, D. KNOLL, R. KURPS, M. LISKER, S. MARSCHMEYER, H. RÜCKER, D. SCHMIDT, J. SCHMIDT, M. SCHUBERT, B. TILLACK, C. WIPF, D. WOLANSKY, AND Y. YAMAMOTO, *Sign hbt technology with f_t/f_{max} of 300ghz/500ghz and 2.0 ps cml gate delay*, in Electron Devices Meeting (IEDM), 2010 IEEE International, Dec., pp. 30.5.1–30.5.4.
- [29] D. HEMMERS, M. BENZID, AND G. PRETZLER, *Direct measurement of the complex refractive index of thin foils in the xuv spectral range by point diffraction interferometry*, Applied Physics B, 108 (2012), pp. 167–175.
- [30] HENKE, *X-ray interactions with matter @ONLINE*. http://henke.lbl.gov/optical_constants/, Sept. 2012.
- [31] B. HENKE, E. GULLIKSON, AND J. DAVIS, *X-ray interactions: Photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E = 50\text{--}30,000$ eV, $Z = 1\text{--}92$* , Atomic Data and Nuclear Data Tables, 54 (1993), pp. 181 – 342.
- [32] D. HERRMANN, L. VEISZ, R. TAUTZ, F. TAVELLA, K. SCHMID, V. PERVAK, AND F. KRAUSZ, *Generation of sub-three-cycle, 16 tw light pulses by using noncollinear optical parametric chirped-pulse amplification*, Opt. Lett., 34 (2009), pp. 2459–2461.
- [33] M. HOFSTETTER, *Multilayer Mirrors for Attosecond Pulse Shaping between 30 and 200 eV*, PhD thesis, Ludwig-Maximillan-Universität, 2011.
- [34] K. ISHIKAWA AND K. MIDORIKAWA, *Two-photon ionization of He^+ as a nonlinear optical effect in the soft-x-ray region*, Phys. Rev. A, 65 (2002), p. 043405.
- [35] J. ITATANI, F. QUÉRÉ, G. L. YUDIN, M. Y. IVANOV, F. KRAUSZ, AND P. B. CORKUM, *Attosecond streak camera*, Phys. Rev. Lett., 88 (2002), p. 173903.
- [36] J. JASNY, U. TEUBNER, W. THEOBALD, C. WULKER, J. BERGMANN, AND F. SCHAFFER, *A single-shot spectrograph for the soft x-ray region*, Review of Scientific Instruments, 65 (1994), pp. 1631–1635.
- [37] Y. H. JIANG, T. PFEIFER, A. RUDENKO, O. HERRWERTH, L. FOUCAR, M. KURKA, K. U. KÜHNEL, M. LEZIUS, M. F. KLING, X. LIU, K. UEDA, S. DÜSTERER, R. TREUSCH, C. D. SCHRÖTER, R. MOSHAMMER, AND J. ULLRICH, *Temporal coherence effects in multiple ionization of N_2 via xuv pump-probe autocorrelation*, Phys. Rev. A, 82 (2010), p. 041403.

- [38] D. KANE AND R. TREBINO, *Characterization of arbitrary femtosecond pulses using Frequency-Resolved Optical Gating*, IEEE Journal of Quantum Electronics, 29 (1993), pp. 571–579.
- [39] L. KELDYSH, *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, JETP, 47 (1964), pp. 1307–1314.
- [40] R. KIENBERGER, E. GOULIELMAKIS, M. UIBERACKER, A. BALTUSKA, V. YAKOVLEV, F. BAMMER, A. SCRINZI, T. WESTERWALBESLOH, U. KLEINEBERG, U. HEINZMANN, M. DRESCHER, AND F. KRAUSZ, *Atomic transient recorder*, Nature, 427 (2004), pp. 817–821.
- [41] Y. KOBAYASHI, T. SEKIKAWA, Y. NABEKAWA, AND S. WATANABE, *27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics*, Opt. Lett., 23 (1998), pp. 64–66.
- [42] F. KRAUSZ AND M. IVANOV, *Attosecond physics*, Rev. Mod. Phys., 81 (2009), pp. 163–234.
- [43] W. L. KRUER AND J. M. DAWSON, eds., *The Physics of Laser Plasma Interactions*, American Institute of Physics, Melville, 1989.
- [44] M. LENZNER, J. KRÜGER, S. SARTANIA, Z. CHENG, C. SPIELMANN, G. MOUROU, W. KAUTEK, AND F. KRAUSZ, *Femtosecond optical breakdown in dielectrics*, Phys. Rev. Lett., 80 (1998), pp. 4076–4079.
- [45] R. LICHTERS, J. MEYER-TER VEHN, AND A. PUKHOV, *Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity*, Physics of Plasmas, 3 (1996), pp. 3425–3437.
- [46] T. H. MAIMAN, *Stimulated optical radiation in ruby*, Nature, 187 (1960), pp. 493–494.
- [47] Y. NABEKAWA, H. HASEGAWA, E. J. TAKAHASHI, AND K. MIDORIKAWA, *Production of Doubly Charged Helium Ions by Two-Photon Absorption of an Intense Sub-10-fs Soft X-Ray Pulse at 42 eV Photon Energy*, Physical Review Letters, 94 (2005), pp. 1–4.
- [48] Y. NABEKAWA AND K. MIDORIKAWA, *Interferometric autocorrelation of an attosecond pulse train calculated using feasible formulae*, New Journal of Physics, 10 (2008), p. 025034.

- [49] Y. NABEKAWA, T. SHIMIZU, T. OKINO, K. FURUSAWA, H. HASEGAWA, K. YAMANOUCI, AND K. MIDORIKAWA, *Conclusive evidence of an attosecond pulse train observed with the mode-resolved autocorrelation technique*, Phys. Rev. Lett., 96 (2006), p. 083901.
- [50] NIST, *NIST atomic spectra database levels form @ONLINE*. http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels_form.html, Sept. 2012.
- [51] Y. NOMURA, R. HÖRLEIN, P. TZALLAS, B. DROMEY, S. RYKOVANOV, Z. MAJOR, J. OSTERHOFF, S. KARSCH, L. VEISZ, M. ZEPF, D. CHARALAMBIDIS, F. KRAUSZ, AND G. D. TSAKIRIS, *Attosecond phase locking of harmonics emitted from laser-produced plasmas*, Nature Physics, 5 (2009).
- [52] N. A. PAPADOGIANNIS, L. A. A. NIKOLOPOULOS, D. CHARALAMBIDIS, G. D. TSAKIRIS, P. TZALLAS, AND K. WITTE, *Two-photon ionization of he through a superposition of higher harmonics*, Phys. Rev. Lett., 90 (2003), p. 133902.
- [53] M. D. PERRY, D. PENNINGTON, B. C. STUART, G. TIETBOHL, J. A. BRITTEN, C. BROWN, S. HERMAN, B. GOLICK, M. KARTZ, J. MILLER, H. T. POWELL, M. VERGINO, AND V. YANOVSKY, *Petawatt laser pulses*, Opt. Lett., 24 (1999), pp. 160–162.
- [54] A. PUKHOV, *Persönliche Korrespondenz von Alexander Pukhov mit Christian Rödel*, 2011.
- [55] F. QUÉRÉ, C. THAURY, P. MONOT, S. DOBOSZ, P. MARTIN, J.-P. GEINDRE, AND P. AUDEBERT, *Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas*, Phys. Rev. Lett., 96 (2006), p. 125004.
- [56] REFRACTIVEINDEX.INFO, *RefractiveIndex.Info @ONLINE*. <http://refractiveindex.info>, Sept. 2012.
- [57] H. R. REISS, *Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system*, Phys. Rev. A, 22 (1980), pp. 1786–1813.
- [58] H. R. REISS, *Strong-field approximation in photoionization*, Radiation Effects and Defects in Solids, 122-123 (1991), pp. 693–710.
- [59] N. ROHRINGER, D. RYAN, R. A. LONDON, M. PURVIS, F. ALBERT, J. DUNN, J. D. BOZEK, C. BOSTEDT, A. GRAF, R. HILL, S. P. HAU-RIEGE, AND J. J. ROCCA, *Atomic inner-shell X-ray laser at 1.46 nanometres pumped by an X-ray free-electron laser*, Nature, 481 (2012), pp. 488–491.

-
- [60] W. ROZMUS AND V. T. TIKHONCHUK, *Skin effect and interaction of short laser pulses with dense plasmas*, Phys. Rev. A, 42 (1990), pp. 7401–7412.
- [61] C. RÖDEL, D. AN DER BRÜGGE, J. BIERBACH, M. YEUNG, T. HAHN, B. DROMEY, S. HERZER, S. FUCHS, A. G. POUR, E. ECKNER, M. BEHMKE, M. CERCHEZ, O. JÄCKEL, D. HEMMERS, T. TONCIAN, M. C. KALUZA, A. BELYANIN, G. PRETZLER, O. WILLI, A. PUKHOV, M. ZEPF, AND G. G. PAULUS, *Harmonic generation from relativistic plasma surfaces in ultrasteep plasma density gradients*, Phys. Rev. Lett., 109 (2012), p. 125002.
- [62] C. RÖDEL, E. ECKNER, AND ET. AL., *Enhanced harmonic*, Science, (2013). submitted.
- [63] C. RÖDEL, M. HEYER, M. BEHMKE, M. KÜBEL, O. JÄCKEL, W. ZIEGLER, D. EHRT, M. KALUZA, AND G. PAULUS, *High repetition rate plasma mirror for temporal contrast enhancement of terawatt femtosecond laser pulses by three orders of magnitude*, Applied Physics B, 103 (2011), pp. 295–302.
- [64] B. E. A. SALEH AND M. C. TEICH, *Fundamentals of photonics*, Wiley, New York [u.a.], 2007.
- [65] T. SHIMIZU, T. OKINO, K. FURUSAWA, H. HASEGAWA, Y. NABEKAWA, K. YAMANOUCHI, AND K. MIDORIKAWA, *Observation and analysis of an interferometric autocorrelation trace of an attosecond pulse train*, Phys. Rev. A, 75 (2007), p. 033817.
- [66] A. A. SOROKIN, M. WELLHÖFER, S. V. BOBASHEV, K. TIEDTKE, AND M. RICHTER, *X-ray-laser interaction with matter and the role of multiphoton ionization: Free-electron-laser studies on neon and helium*, Phys. Rev. A, 75 (2007), p. 051402.
- [67] E. A. SPILLER, ed., *Soft X-Ray Optics*, SPIE - The International Society for Optical Engineering, Bellingham, first ed., 1993.
- [68] D. STRICKLAND AND G. MOUROU, *Compression of amplified chirped optical pulses*, Optics Communications, 56 (1985), pp. 219 – 221.
- [69] Y. TAMAKI, J. ITATANI, Y. NAGATA, M. OBARA, AND K. MIDORIKAWA, *Highly efficient, phase-matched high-harmonic generation by a self-guided laser beam*, Phys. Rev. Lett., 82 (1999), pp. 1422–1425.
- [70] PIEZOSYSTEM JENA, *PZ 100 CAP: kompakter piezoaktuator mit kapazitivem wegmesssystem @ONLINE*. http://www.piezosystem.de/news/newsarchiv/artikel/pz_100_cap_kompakter_piezoaktuator_mit_kapazitivem_wegmesssystem/, Jan. 2007.

-
- [71] C. THAURY, F. QUÉRÉ, J.-P. GEINDRE, A. LEVY, T. CECCOTTI, P. MONOT, M. BOUGEARD, F. RÉAU, P. D'OLIVEIRA, P. AUDEBERT, ET AL., *Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics*, Nature Physics, 3 (2007), pp. 424–429.
- [72] C. THAURY AND F. QUÉRÉ, *High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors: basic mechanisms*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 43 (2010), p. 213001.
- [73] A. C. THOMPSON AND D. VAUGHAN, eds., *X-ray Data Booklet*, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, third ed., Oct. 2009.
- [74] G. D. TSAKIRIS, K. EIDMANN, J. M. TER VEHN, AND F. KRAUSZ, *Route to intense single attosecond pulses*, New Journal of Physics, 8 (2006), p. 19.
- [75] P. TZALLAS, D. CHARALAMBIDIS, N. A. PAPADOGIANNIS, K. WITTE, AND G. D. TSAKIRIS, *27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics*, Nature, 426 (2003), pp. 267–271.
- [76] P. TZALLAS, E. SKANTZAKIS, AND D. CHARALAMBIDIS, *Direct two-xuv-photon double ionization in xenon*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 45 (2012), p. 074007.
- [77] L. WALDECKER, P. HEISSLER, R. HÄRLEIN, K. ALLINGER, M. HEIGOLDT, K. KHRENNIKOV, J. WENZ, S. KARSCH, F. KRAUSZ, AND G. D. TSAKIRIS, *Focusing of high order harmonics from solid density plasmas*, Plasma Physics and Controlled Fusion, 53 (2011), p. 124021.
- [78] WIKIPEDIA, *Xenon @ONLINE*. <http://de.wikipedia.org/wiki/Xenon>, Aug. 2012.
- [79] H. ZACHARIAS, *Persönliche Mitteilung*, 2012.
- [80] M. ZEPF, G. D. TSAKIRIS, G. PRETZLER, I. WATTS, D. M. CHAMBERS, P. A. NORREYS, U. ANDIEL, A. E. DANGOR, K. EIDMANN, C. GAHN, A. MACHACEK, J. S. WARK, AND K. WITTE, *Role of the plasma scale length in the harmonic generation from solid targets*, Phys. Rev. E, 58 (1998), pp. R5253–R5256.